

# 溶融金属中粒子の乱流凝集における粒子間相互作用力

著者	谷口 尚司
URL	<a href="http://hdl.handle.net/10097/41366">http://hdl.handle.net/10097/41366</a>

溶融金属中粒子の乱流凝集における  
粒子間相互作用力

10450276

平成 10 年度～平成 11 年度科学研究費補助金

(基盤研究(B)(2))研究成果報告書

平成 12 年 10 月

研究代表者 谷 口 尚 司

(東北大学大学院工学研究科教授)

## は し が き

### 研 究 組 織

研究代表者：谷 口 尚 司（東北大学大学院工学研究科教授）

研究分担者：菊 池 淳（東北大学大学院工学研究科教授）

研究分担者：松 本 克 才（東北大学大学院工学研究科助手）

### 研 究 経 費

平成 10 年度 4, 500千円

平成 11 年度 2, 700千円

計 7, 200千円

### 研 究 発 表

(1)学協会誌等 なし

(2)口頭発表

谷口尚司、菊池 淳、嶋崎真一、和田敏之、伊勢知子、高瀬誠宜  
「乱流溶鋼中における介在物粒子の動的挙動に関する水モデル実験」、  
材料とプロセス、平成11年11月22日

菅原誠司、谷口尚司、「溶鋼中介在物の凝集に関するモデル実験」、  
材料とプロセス、平成11年11月21日

(3)出版物

日本鉄鋼協会超清浄鋼研究会最終報告書、「超清浄鋼研究の最近の展開」、日本鉄鋼協会、平成11年5月20日 (III-2 介在物凝集・分離の基礎研究、谷口尚司、菊池 淳、伊勢知子、高瀬誠宜、和田敏之、「溶鋼中介在物の流体力学的挙動」)

東北大学図書



00010141135

附属図書館

## 目 次

1. 緒言
2. 水モデルによる乱流凝集実験
  - 2-1 試料粒子
  - 2-2 実験方法
  - 2-3 実験結果
  - 2-4 考察
  - 2-5 結言
3. 水モデルによる乱流凝集実験に関する数値解析
  - 3-1 数値計算法
  - 3-2 考察
  - 3-3 結言
4. 有機溶媒中の粒子凝集実験
  - 4-1 実験方法
  - 4-2 結果
5. 熔融金属中の凝集実験
  - 5-1 実験方法
  - 5-2 実験結果
6. 電磁力による熔融金属中粒子の分離実験
  - 6-1 実験方法
  - 6-2 結果と考察
7. 総括



# 1 緒言

鉄鋼材料やその他の金属材料中に懸濁している微細な介在物の処理法は、金属製錬において重要な課題となっている。熔融金属中の懸濁粒子、いわゆる介在物の存在は、薄板の疵、線材の断線、強加工時の割れなどの致命的問題を引き起こす原因になっている。

近年、製品によっては数ミクロンの微細な介在物まで完全に除去することが求められる等、品質に対する要望が厳しくなっている。そこで、積極的な介在物分離技術が追求されることが必要であるとともに、特に流れ場での介在物の衝突・凝集・浮上機構に関する基礎研究や数学的シミュレーションによる解析技術の開発などが急務となっている。

しかし、現状では溶鋼流動中での介在物の凝集肥大化のメカニズム、浮上分離や壁への付着機構、気泡による介在物の強制除去といった現象への科学的知見は十分とはいえず、その解明が必須となっている。

そこで、本研究では、微小介在物の乱流場での凝集現象に着目し、熔融金属中の粒子凝集において重要と考えられるハマカー定数（van der Waals 力の定数）を基に、以下に示す考察を行う。

## 1. 水モデルによる乱流凝集実験：

水モデル実験では、介在物の挙動に関する基礎的研究の充実に図った。

実験は、攪拌槽内における液中懸濁粒子の乱流凝集に着目し、凝集速度に対する初期粒子数、攪拌数の影響、及び粒径分布の経時変化について実験的に考察した。また、数値計算をポピュレーションバランスの式と粒度分布をグループ化して計算する Grouping モデルの両者で行い、計算結果と実験結果で得られた粒径分布を比較・検討した。

## 2. 有機溶媒中の粒子凝集実験：

水中における乱流凝集実験から得られるハマカー定数には、粒子の疎水性の影響を受ける可能性がある。そこで非極性有機溶媒中での乱流凝集実験を試みた。

## 3. 熔融金属中の粒子凝集実験：

熔融金属中に一定粒径の模擬介在物を所定量分散することを目的とした超音波分散装置を製作し、熔融 Al 中の SiC 粒子の凝集実験を試みた。得られた Al 試料中の SiC 粒子は顕微鏡観察を行った。これにより SiC 粒子の凝集速度を求めれば、ハマカー定数の推算値に基づいた凝集速度と比較することができる。

## 2 水モデルによる乱流凝集実験

凝集によって粒子の粒径分布は大きく変化する。しかし、以前の研究においては、粒径分布には触れず、粒子総数の経時変化のみを対象としていた。これは、使用した粒子測定装置（コールターカウンタ）が、指定した粒径よりも大きな粒子の数を計測するものであったためである。従って、正確な粒径分布に基づいて凝集現象を解析するためには、短時間で粒径分布および粒子総数を測定できる装置が必要であった。

そこで、この要求を満たす装置として、コールター社製のマルチサイザーⅡを平成 10 年度に導入した。本装置によって、これまで本研究室で行われた PSL および SiC 粒子の凝集実験を再び行い、粒径分布に基づいた凝集の解析を行うことができる。

### 2-1 試料粒子

実験では PSL 粒子、SiC 粒子の 2 種類の粒子を用いた。PSL 粒子に関しては粒径  $2.02\mu\text{m}$  の方を使用した。実験に使用した各粒子の SEM 観察写真を Fig.2.1 に、初期粒径分布を Fig.2.2 と Fig.2.3 にそれぞれ示した。粒径分布はコールターカウンタ法(電気的検知帯法)により測定している。PSL 粒子は、極めて粒径分布が狭く、完全な球形粒子である。しかし、SiC 粒子は粒径分布を持ち、不規則な形状の非球形粒子である。SiC 粒子は密度が実験の水溶液と異なるが、粒径が非常に小さいために沈降速度が極めて遅く、粒子の沈降が与える実験への影響は殆ど無いものと考えられる。したがって、攪拌槽中では乱流凝集が支配的であり、この密度差の影響は無視できるものとして解析を行った。

PSL 粒子は市販の PSL 試料分散液(日新 EM(株)製、Polystyrene Latex 粒子)を用いた。使用の際して、製品に含まれる分散剤を除去するために以下の処置を施した。まず、原液を遠心分離器にかけ粒子を強制沈降させる。そして、この上澄み液を捨て、粒子にイオン交換水を加え、超音波分散機にかける。この操作を三回繰り返し行うことで、分散剤を除去し、凝集実験に用いた。

SiC 粒子(NORTON AS 製、SiC#6000)は入手時点ではかなり広い粒径分布を持っていたために沈降法により整粒を行った。即ち、円筒状のガラス管中に、分散剤としてヘキサメタリン酸ナトリウムを所定濃度溶解したイオン交換水を満たし、そこへ試料懸濁液を静かに投入し、粒径に起因する沈降速度の相違を利用して、目的とする粒径の試料を採取した。

SiC 粒子は水溶液中ではその表面近傍に電気二重層が形成される。電気二重層はその厚さに依存する粒子間斥力を生み、この斥力が凝集に影響を与える。し

かし、この電気二重層の厚さは水溶液中の pH と電解質濃度を調整することで殆ど影響を及ぼさないほど薄くすることができる。これにより粒子間の電氣的斥力を無視することができ、粒子同士が接近すると直ちに凝集が起こると考えることができる。このように液中で電氣的斥力を十分に無視できる凝集形態を急凝集と呼ぶ。急凝集の条件を満たす水溶液の pH と電解質濃度については、過去の本研究室における研究データをもとに pH を 3.5、電解質は NaCl を使用した場合にその濃度を  $3.0 \times 10^3 \text{ mol} \cdot \text{m}^{-3}$  と決定した。また、急凝集の条件は粒子の表面性状や粒子の製法の違いにより多大な影響を受けるといわれている。そこで、SiC 粒子は試料表面が酸化している可能性を考慮し、弗化水素酸を用いて試料表面を洗浄した。そして、弗化水素酸を廃棄した後分散剤としてヘキサメタリン酸ナトリウムを所定濃度溶解したイオン交換水を満たし、洗浄に使用した残存している弗化水素酸の希釈と除去、及び SiC 粒子の十分な分散を目的として PSL 粒子と同様に超音波分散機と遠心分離機にかける操作を三回行った後で実験に使用した。

## 2-2 実験方法

本実験で使用した実験装置の概略図を Fig.2.4 に示す。攪拌槽は四枚の邪魔板と二枚の攪拌羽根から成り、この攪拌羽根を一定速度で回転させることにより槽内に一様な乱流状態を形成する。攪拌羽根は直径  $40 \times 10^{-3} \text{ m}$  のテフロン製である。二枚の羽根は攪拌の軸に対して 45 度に傾けてあり、攪拌時には攪拌槽底部に向かう流れが生じる。また、攪拌槽は液温を一定に保つために恒温槽内に浸漬し実験を行った。

攪拌槽内には電解質濃度と pH を調整した電解質水溶液を満たし、アルゴン雰囲気下で実験を行った。また、キャビテーションを防ぐために実験で使用する電解液は、その内部に溶解している空気を予め減圧法により除去した。

実験は事前に作成した試料粒子分散液を実験直前に超音波分散機にかけた後、所定量を攪拌槽に投入し、所定時間経過毎に電解液を微量採取し、懸濁している粒子数、及びその粒径分布をコールターカウンタ法で計測し、これらの経時変化を調べた。コールターカウンタ法によって詳細に分割されたそれぞれの粒径毎に粒子数を測定でき、これにより測定した粒子数から各粒径における体積への換算も同時に行った。実験では試料投入後 20 秒の時点で採取したものを初期粒子数とみなした。

## 2-3 実験結果

### 2-3-1 PSL 粒子の凝集実験

粒子浮上現象は今回初めて見られたもので、その原因は未だ不明であるが、PSL 粒子のロットの違い、攪拌羽根の違い（ガラスからテフロン）、水の違い（イオン交換水から蒸留水）のいずれかが影響していると思われる。

PSL 粒子を用いて攪拌数 400rpm で凝集実験を行った結果を Fig.2.5 に示す。Figure2.5 は粒子総数  $N_t/N_0$  の経時変化を示したものである。粒子総数は単位粒子が凝集、肥大化するために、徐々に減少しているものと考えられる。また、初期粒子数が高くなるに従い、粒子総数の減少速度が速くなっているが、これは粒子数が多いと粒子間の衝突頻度が増加し、凝集、肥大化が起きやすくなっていることを示唆している。

本実験では、過去の実験とほぼ同一の条件で行っているが、過去に見られなかった粒子浮上現象が見られた。実験中、時間が経過すると、白色の PSL 粒子が攪拌槽の液面に浮上し、次第にその量を増した。またこの際、攪拌槽の壁面や底面への粒子付着は認められなかった。したがって、この粒子の浮上が粒子総数の変化に影響を与えていることが考えられる。そこで粒子数の経時変化を調べるために各初期粒子数における粒径分布の経時変化をそれぞれ、Fig.2.6～Fig.2.8 に示した。図より、実験開始後およそ 20min までは、時間の経過とともに小粒径の粒子数が減少し、大粒径の粒子数が増加していく傾向が全ての結果にみられる。しかし、30min 以降は、大粒径の粒子数も減少している。また、初期粒子数が増加するほど小粒径の減少が早期に進むことがわかる。

粒子総数と粒径分布から、各時刻における粒子の総体積を算出し、その経時変化を Fig.2.9 に示した。図より、初期粒子数はおおよそ 600 秒までは一定とみなせるが、それ以降は全粒子体積の減少が激しく、実験終了時には全粒子体積が初期粒子体積の数%にまで減少している。このことから粒子総数の減少は凝集によるものに加えて、粒子が浮上分離することにより攪拌槽内粒子数が減少していくためと考えられる。

次に、各実験における初期粒子数の補正のために Higashitani モデルに従い Eq.2-1 で表される無次元時間  $t^*$  を横軸にした凝集曲線を Fig.2.10 に示す。

$$t^* = 1.3\alpha \left( \frac{\varepsilon}{v} \right)^{1/2} a_1^3 N_0 t \quad (2-1)$$

実験結果の規格化に必要な Hamaker 定数は文献値<sup>1)</sup>を使用した。Figure2.10 から明らかなように初期粒子数の少ないものが一つの凝集曲線に乗っているが、理論曲線に比べ短時間側に位置している。今回の結果は、浮上分離によって粒子総数の減少が速くなり、理論曲線から短時間側に偏倚したと考えられる。

### 2-3-2 SiC 粒子の凝集実験

SiC 粒子の凝集実験においては、PSL 粒子で見られた液面への浮上や壁付着および底面への沈降は、全く見られなかった。

攪拌数 400rpm で行った SiC 粒子の凝集実験の結果を Fig.2.11 に示す。PSL 粒子の場合と同様に Fig.2.11 は粒子総数  $N_t/N_0$  の経時変化を示したものである。粒子総数は単位粒子が凝集、肥大化するに従い、徐々に減少していくと考えられる。PSL 粒子の場合と比較して初期粒子数の多いものの方が、測定終了時点では初期粒子数の少ないものよりも粒子総数の減少が小さいことも示されている。

SiC 粒子について、各初期粒子数における粒径分布の経時変化をそれぞれ、Fig.2.12～Fig.2.14 に示す。時間の経過とともに、小粒径の粒子数が減少し、大粒径の粒子数が増加している。全粒子体積の経時変化を Fig.2.15 に示した。PSL の場合 (Fig.2.9) と異なり、全粒子体積は、より長時間まではほぼ一定値を保っており、実験中の粒子の系外損失が小さいことがわかる。以上より、SiC の凝集実験においては、Fig.2.11 の粒子総数の減少は凝集によって起こっていると考えられる。

今、粒径変化をより詳しく見るために、Fig.2.16～Fig.2.18 に SiC 粒子の各粒径での粒子数の経時変化を示す。これらの図を比較すると、全体としては初期粒子数によらず小粒径側の粒子数が減少し、大粒径側の粒子数が増加している。しかし、時間の経過とともに初期粒子数の多いものほど小粒径の粒子数の減少速度が遅くなり、大粒径の粒子数が次第に少なくなっている。さらに長時間側では、各粒径の粒子数が一定になっている。これは凝集と分裂が平衡に達するためと考えられる。また、初期粒子数が多い程、大粒径粒子の粒子数が下がっているのは、粒子数が多いために衝突頻度が大きくなり、大粒径粒子の分裂が盛んに起こっているためと考えられる。

次に、PSL と同様に Eq.2-1 で表される無次元時間  $t^*$  を横軸にした初期粒子数を補正した凝集曲線を Fig.2.19 に示す。実験結果の規格化に必要な Hamaker 定数は文献値<sup>2)</sup>を使用した。また、凝集曲線の計算値は、初期粒径が平均粒径であるとして求めたものである。

Figure2.19 より、PSL 粒子の場合とは異なり、初期粒子数の少ないものはほぼ理論曲線上に存在している。しかし、初期粒子数が多くなるほど理論曲線からの長時間側への偏倚が大きくなる。加えて、初期粒子数が多いものは、長時間側において粒子総数がほぼ一定になる。このことは微小粒子が凝集し、肥大化していくことと、同時に肥大化した凝集体が小さな凝集体に分裂することの二つの現象が時間の経過とともに平衡に達するためと考えられる。



2-4 考察

2-4-1 実験結果からの Hamaker 定数の推算

Hamaker 定数は London-van der Waals 力に起因する物質の分散力の大きさを表す定数である。London-van der Waals 力の起源が分子間の双極性に由来することから、Hamaker 定数は物質ごとに定まる固有値であり、物質の周囲に存在する媒質や、温度などによって変化する。Hamaker 定数の測定はコロイド科学やレオロジー工学において測定が行われてきたが、近年では Lifshitz の巨視的理論に従って光学的データから推算された Hamaker 定数が最も信頼性の高い値として報告されている。無機化合物についての Hamaker 定数は参考文献<sup>3)</sup>で報告がなされている。

本研究ではポピュレーションバランスの式より得られた理論曲線との比較により実験結果から導出される Hamaker 定数を PSL、SiC それぞれの凝集力の度合いを示すパラメータとして取り扱い、Lifshitz の巨視的理論に従い算出された Hamaker 定数と比較することで攪拌槽内の凝集挙動を推察する。

実験結果からの Hamaker 定数の導出法は、理論曲線に実験より得られた凝集曲線が一致するように凝集係数  $\alpha$  を決定し、その  $\alpha$  から Hamaker 定数  $A$  を逆算する方法で行った。Hamaker 定数の推算に際しては初期粒子数が多いものほど凝集だけでなく、分裂も起こっている傾向を考慮する必要性が SiC 粒子の実験で得られたので、粒子総数が理論曲線と同様に十分に減少している初期粒子数が少ないもので推算を行う。Figure2.20 に実験結果を用いて算出した PSL 粒子の Hamaker 定数を用いて規格化された PSL の凝集曲線を示す。Figure2.20 に示すようにここでの Hamaker 定数は  $6.0 \times 10^{-20}$  J と推算された。同様に Fig.2.21 に実験結果を用いて算出した SiC 粒子の Hamaker 定数を用いて規格化された SiC の凝集曲線を示す。Figure2.21 に示すようにここでの Hamaker 定数は  $20 \times 10^{-20}$  J と推算された。

実験により算出された Hamaker 定数を及び Lifshitz 理論より得られた Hamaker 定数と比較する(Table2-1)。

Table 2-1 Hamaker constants in water ( $10^{-20}$ J).

Particle	PSL	SiC
This study	6.0	20
Lifshitz theory	1.0	13

PSL 粒子での Hamaker 定数が大きく異なるのは、粒子が浮上することにより大幅な粒子総数の減少が起こり、この影響が測定した粒子総数の経時変化に大きく関与しているためと考えられる。SiC はほぼ理論値に一致していると考えてよいものと思われ、実験により得られた粒径分布は凝集現象を考慮する上で妥当な値であると考えられる。

### 2-4-2 熔融金属中の Hamaker 定数の推算

媒質 3 中に粒子 1 が懸濁している場合の粒子間の Hamaker 定数は次式により表すことができる。

$$A_{131} \cong \left(\sqrt{A_{11}} - \sqrt{A_{33}}\right)^2 \tag{2-2}$$

ここで  $A_{11}$ 、 $A_{33}$  はそれぞれ粒子、媒質の真空中での Hamaker 定数を表す。また、Hamaker 定数は次式のように定義される。

$$A_{11} = \pi^2 q_1^2 \beta_{11} \tag{2-3}$$

ここで  $q_1$  は単位体積あたりの分子数、 $\beta_{11}$  は London 式の係数である。London-van der Waals 力は分極された原子間に作用するクーロン力を起源としているため、 $\beta_{11}$  の温度依存性は無視することができる。従って、異なる温度雰囲気での Hamaker 定数は Eq.2-2 中の  $q_1$  の温度依存性を考慮すればよいことになる。本研究では水自身の真空中での Hamaker 定数を与えることにより実験値より SiC 粒子の真空中での Hamaker 定数  $A_{11}$  を求め、次に溶融アルミニウムの真空中での Hamaker 定数を Eq.2-2 に代入することにより SiC 粒子の溶融アルミニウム中の Hamaker 定数に換算した。Table2-2 に SiC 粒子の溶融アルミニウム中の Hamaker 定数を示す。

Hamaker 定数は粒子の表面性状や製法の違いにより凝集条件が影響を受けるために、本実験に使用した粒子に対してのみ適用でき、異なる粒子においては異なる結果になる可能性がある。

Table 2-2 Estimated Hamaker constants in different solvent (10<sup>-20</sup>J).

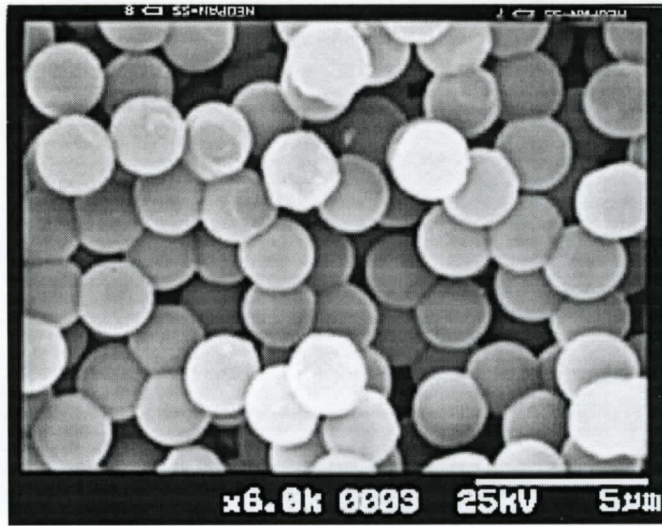
SiC Particle (1)		$A_{131}$	20
Solvent (3)	Water	$A_{33}$	4.0
		$A_{11}$	41.9
	Liq.Aluminum	$A_{33}$	25.7
		$A_{131}$	1.97

## 2-5 結言

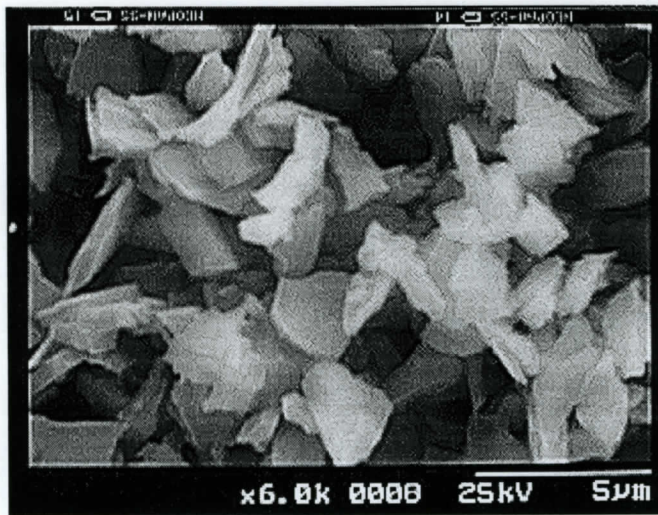
攪拌羽根を用いて乱流状態を形成した攪拌槽中における凝集実験を PSL 粒子、及び SiC 粒子について行った。各粒子において初期粒子数を変化させて実験を行ったところ、初期粒子数が増加するに従い、凝集速度が速くなる結果を得た。PSL 粒子では実験時に観察された粒子の浮上が粒径分布と全粒子体積の経時変化からも確認された。SiC 粒子では初期粒子数が増加するほど凝集だけでなく分裂も起こると考えられる挙動が粒子総数の測定から認められ、粒径分布の経時変化からも確認された。

実験結果から Hamaker 定数を算出し、Lifshitz 理論による Hamaker 定数との比較を行った。PSL 粒子では理論値と大きく異なり、これは粒子浮上の影響と考えられる。逆に、SiC 粒子では初期粒子数の少ないもので理論値とほぼ一致した。これにより得られた粒径分布の経時変化は妥当な値であると考えられ、数値計算を行う上での指標になると考えられる。





(a)PSL particles.



(b)SiC particles.

Fig.2.1 SEM photograph of particles.

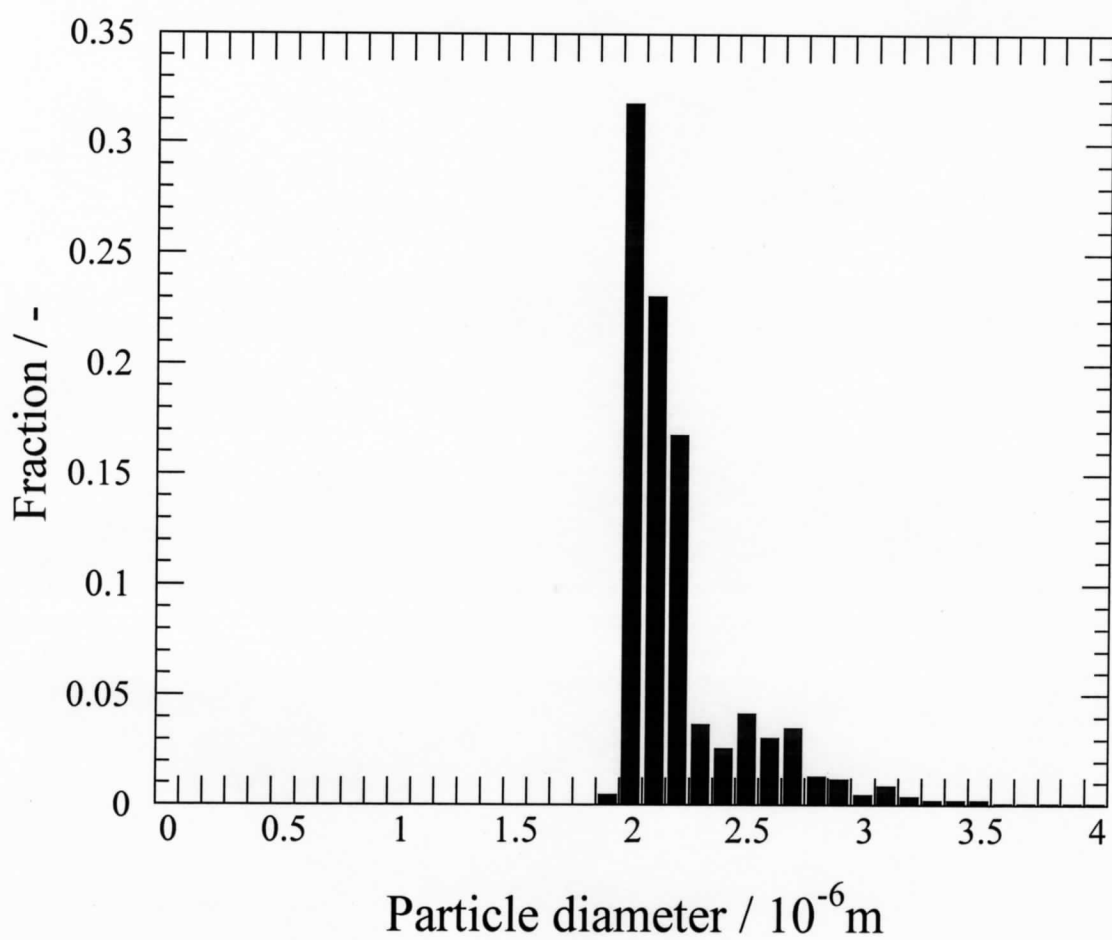


Fig.2.2 Initial particle size distribution of PSL.

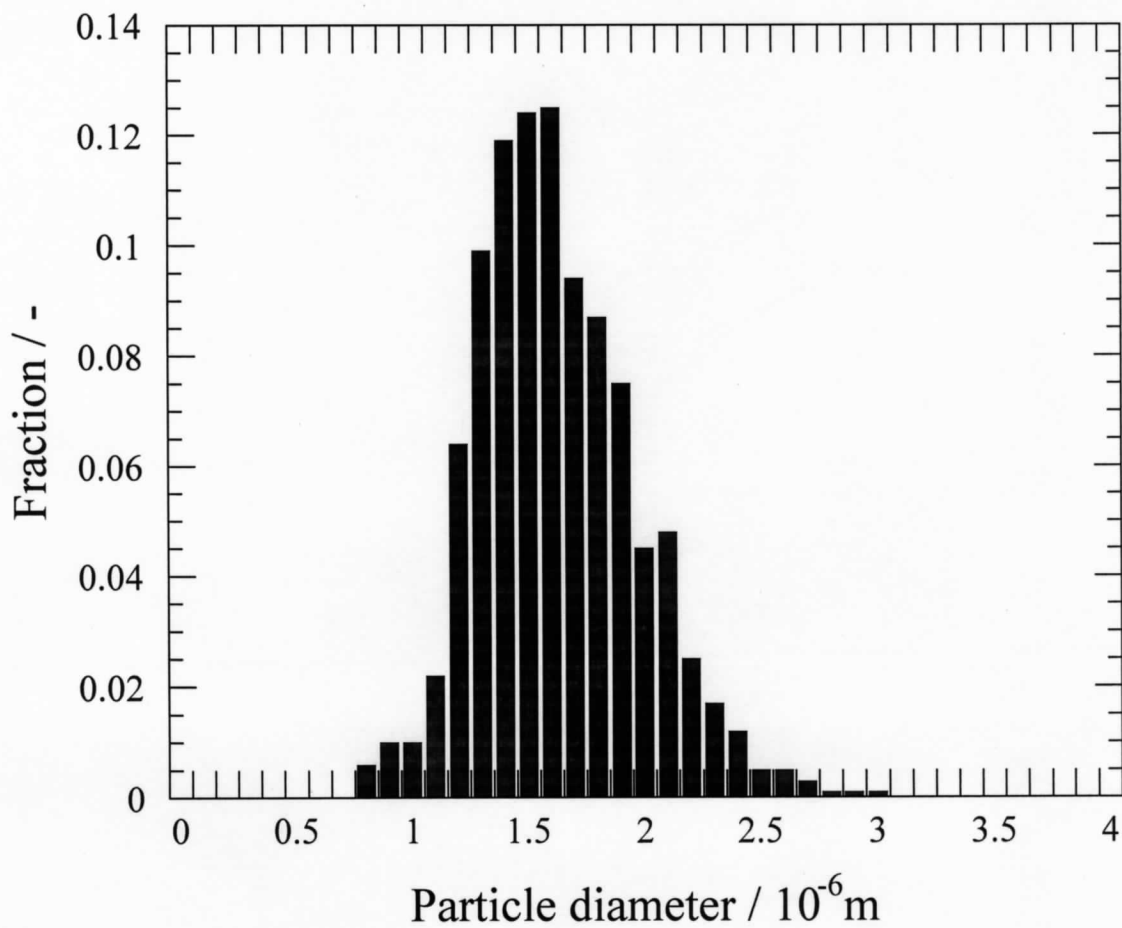


Fig.2.3 Initial particle size distribution of SiC.

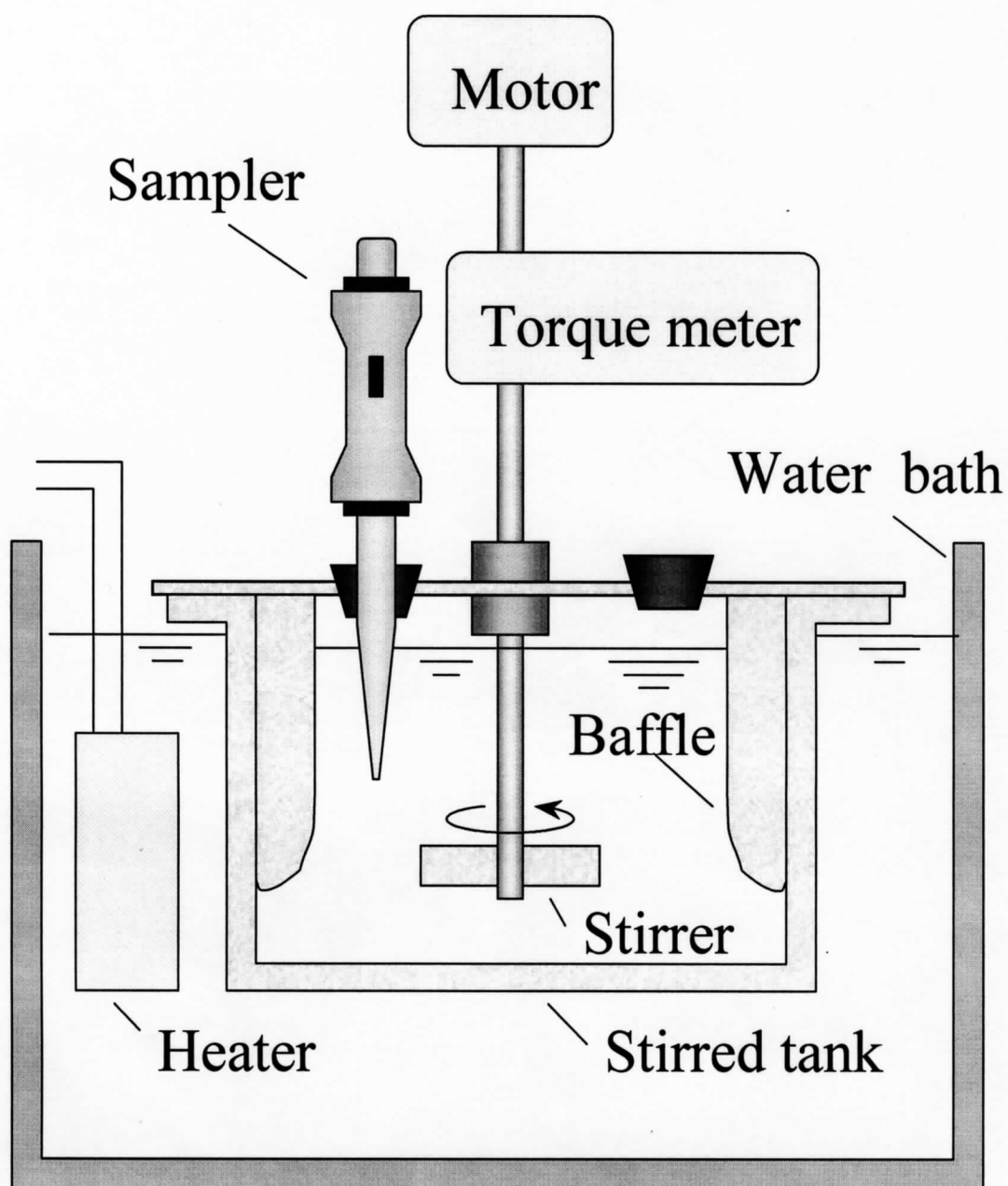


Fig.2.4 Experimental apparatus.

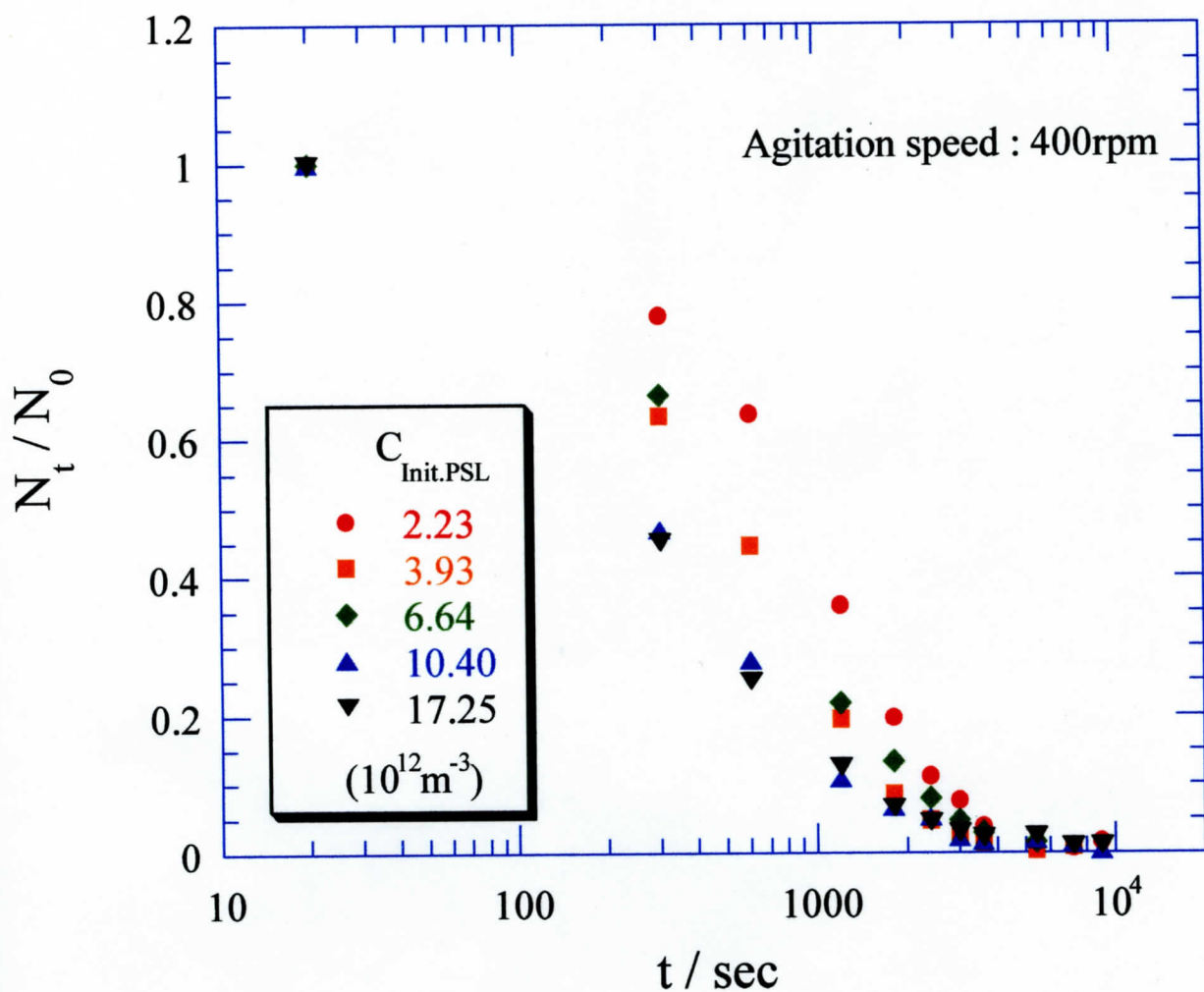


Fig.2.5 Coagulation curves of PSL particles.

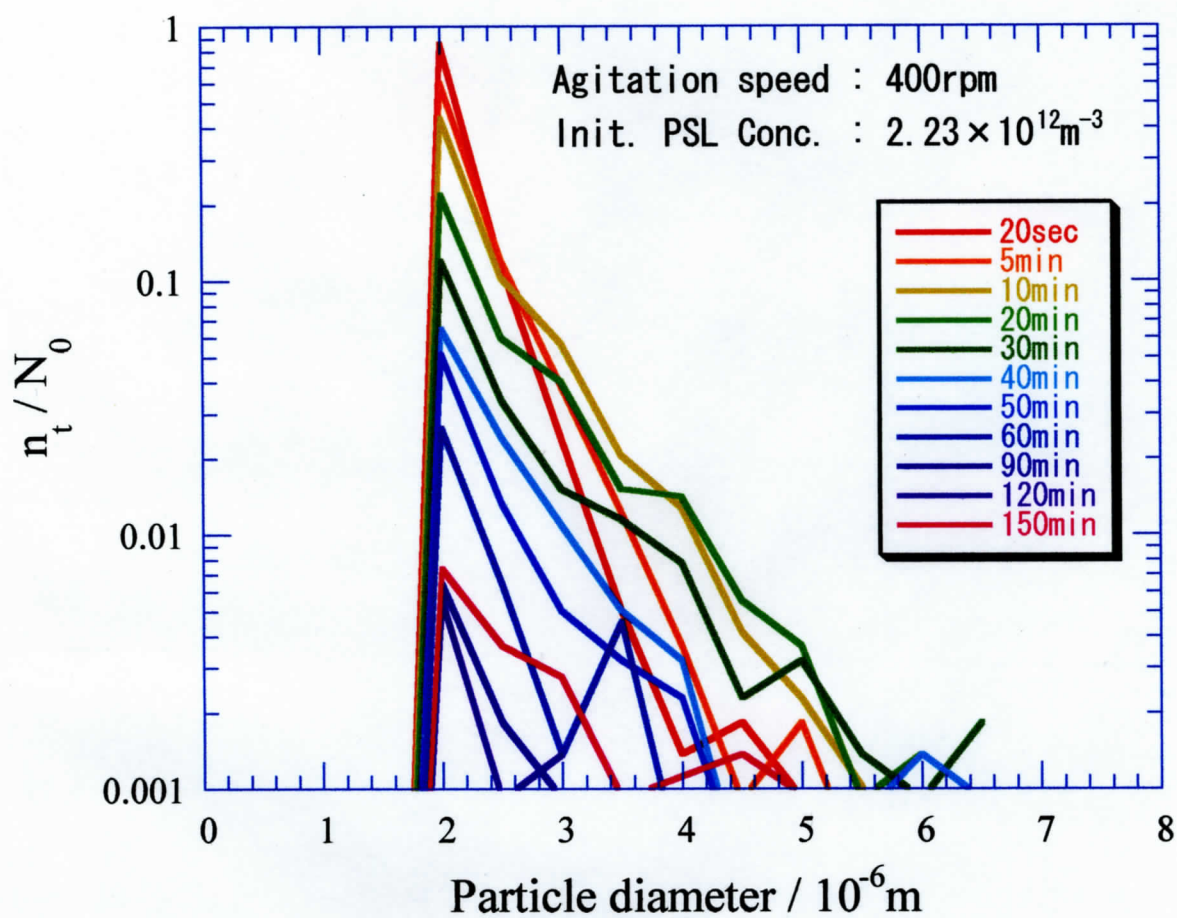


Fig.2.6 PSL particle size distributions of low particle concentration.



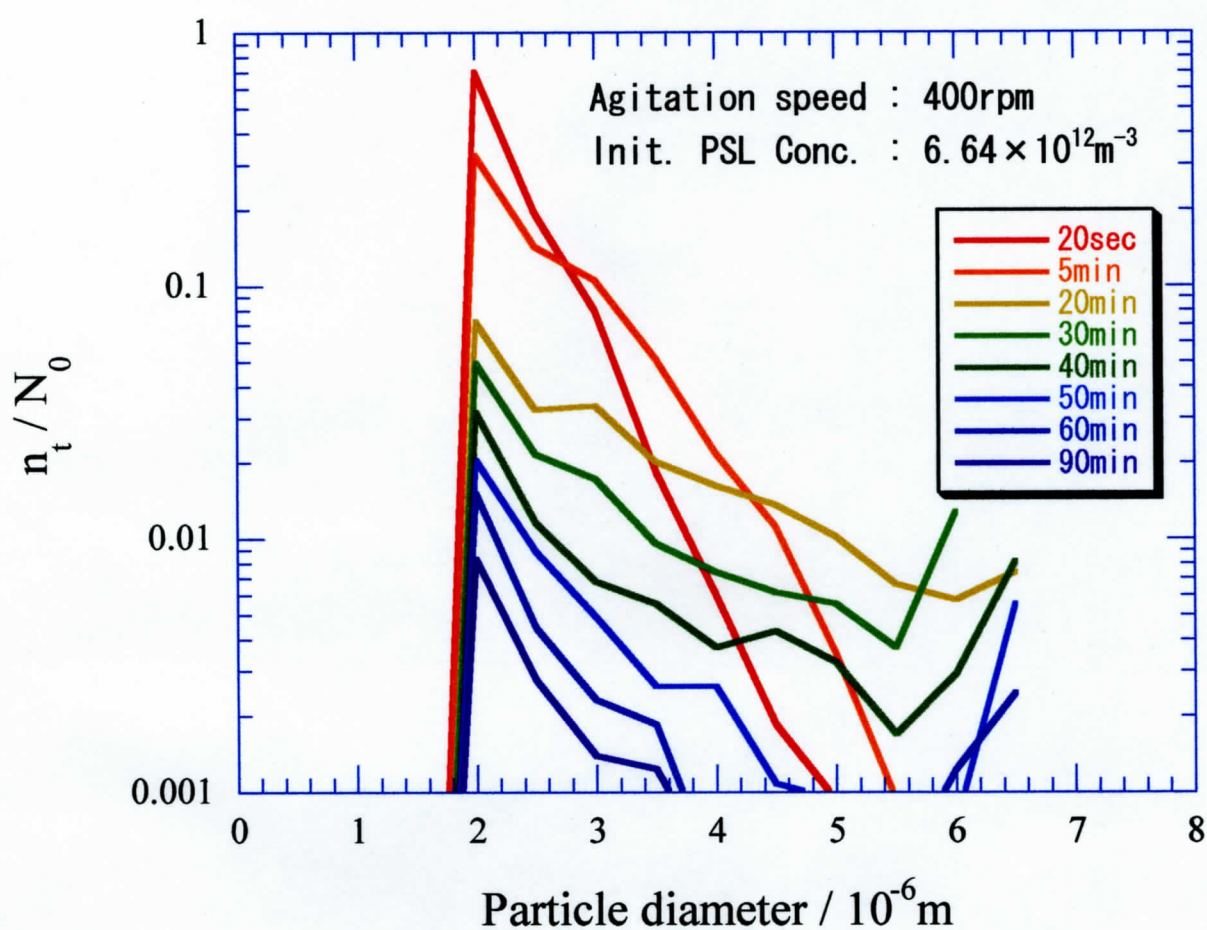


Fig.2.7 PSL particle size distributions of middle particle concentration.

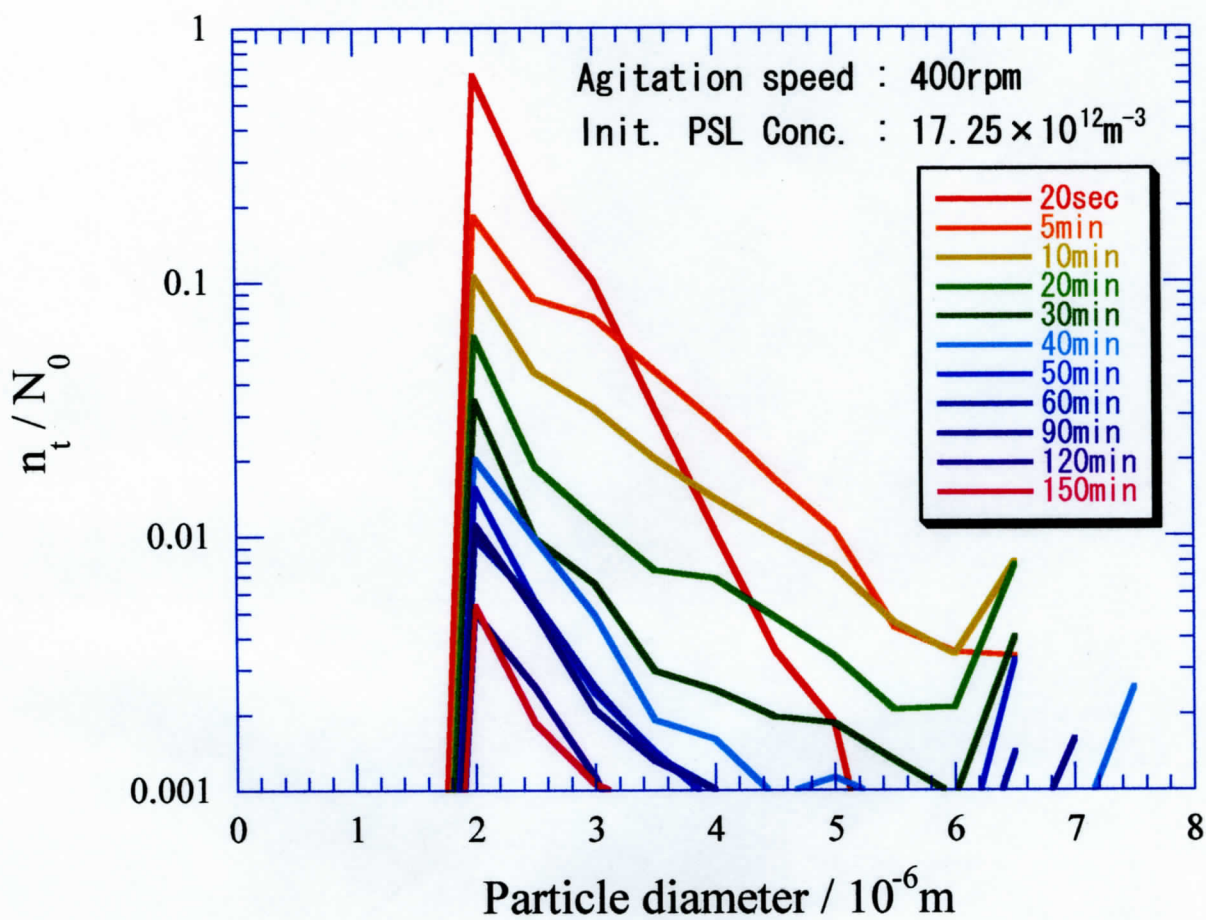


Fig.2.8 PSL particle size distributions of middle particle concentration.



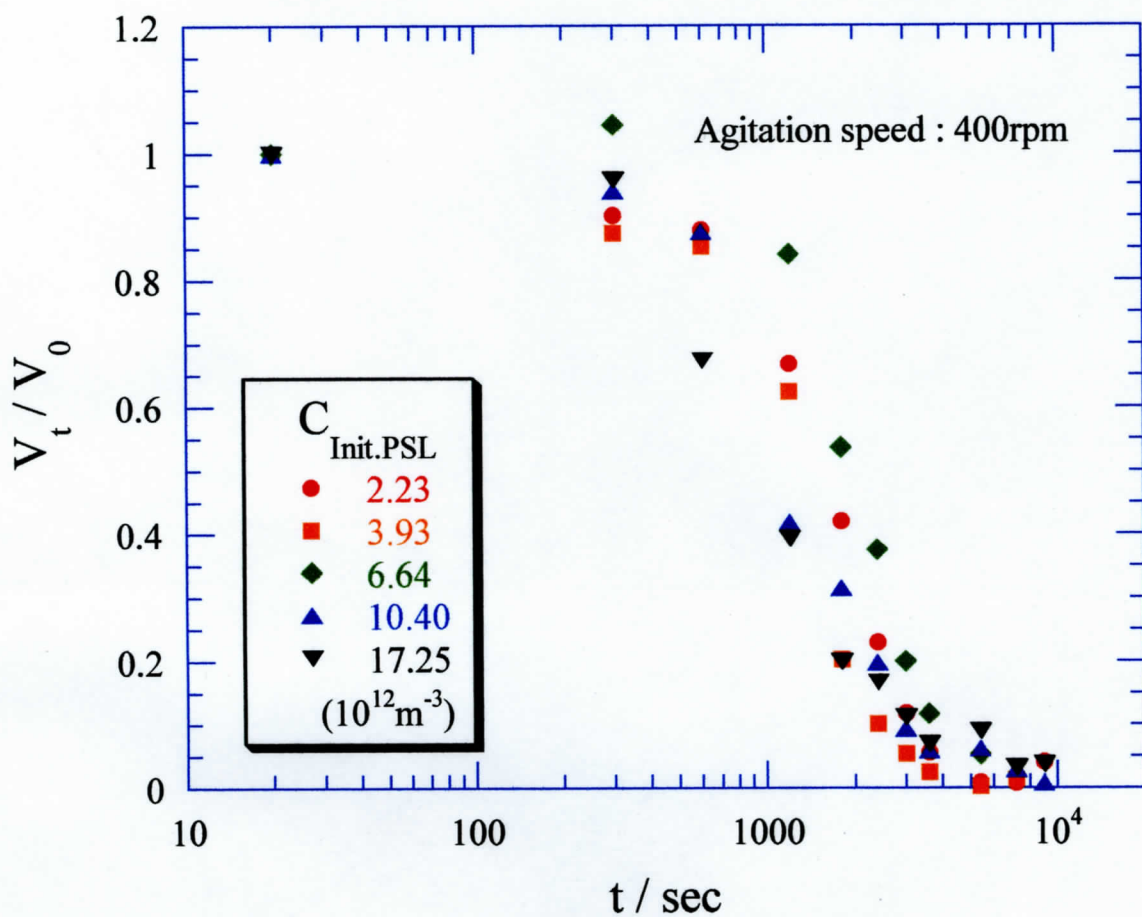


Fig.2.9 Change in volume variations of PSL particle.

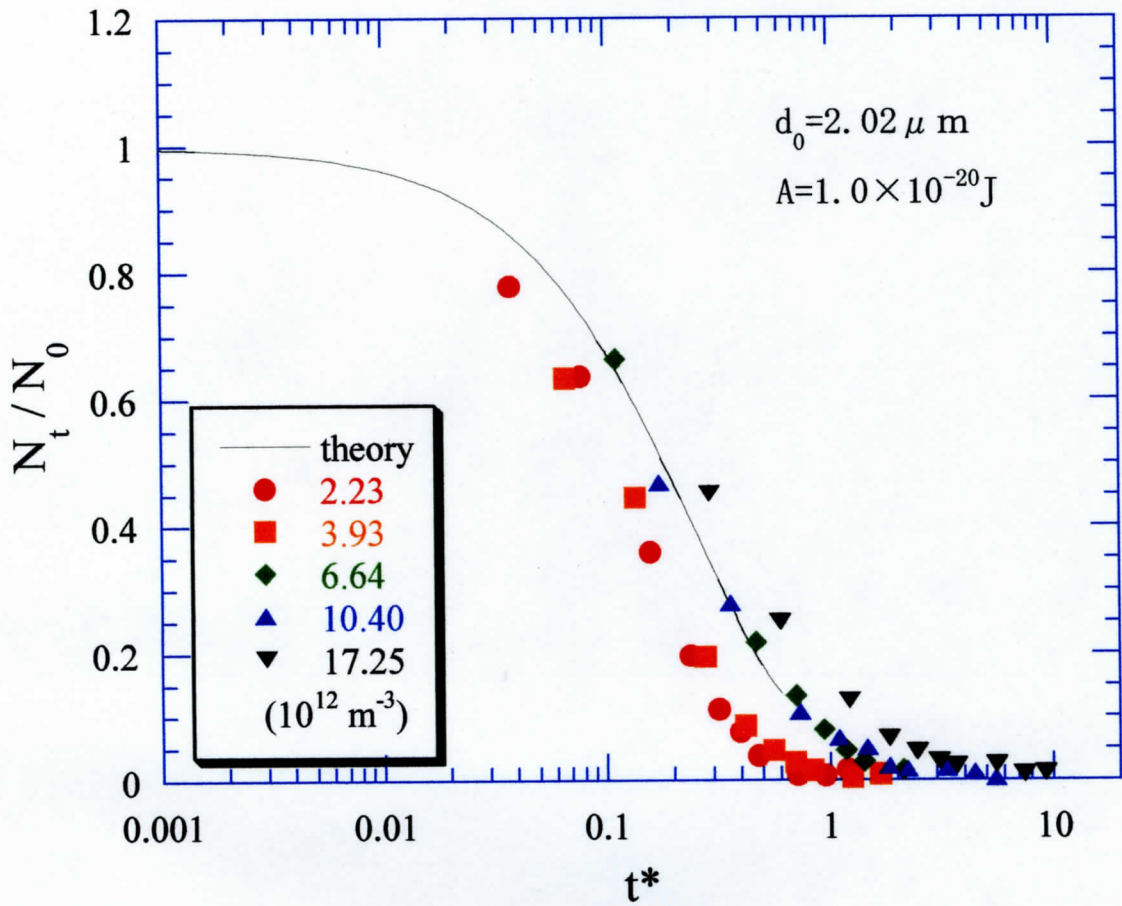


Fig.2.10 Normalized coagulation curves for PSL particles.

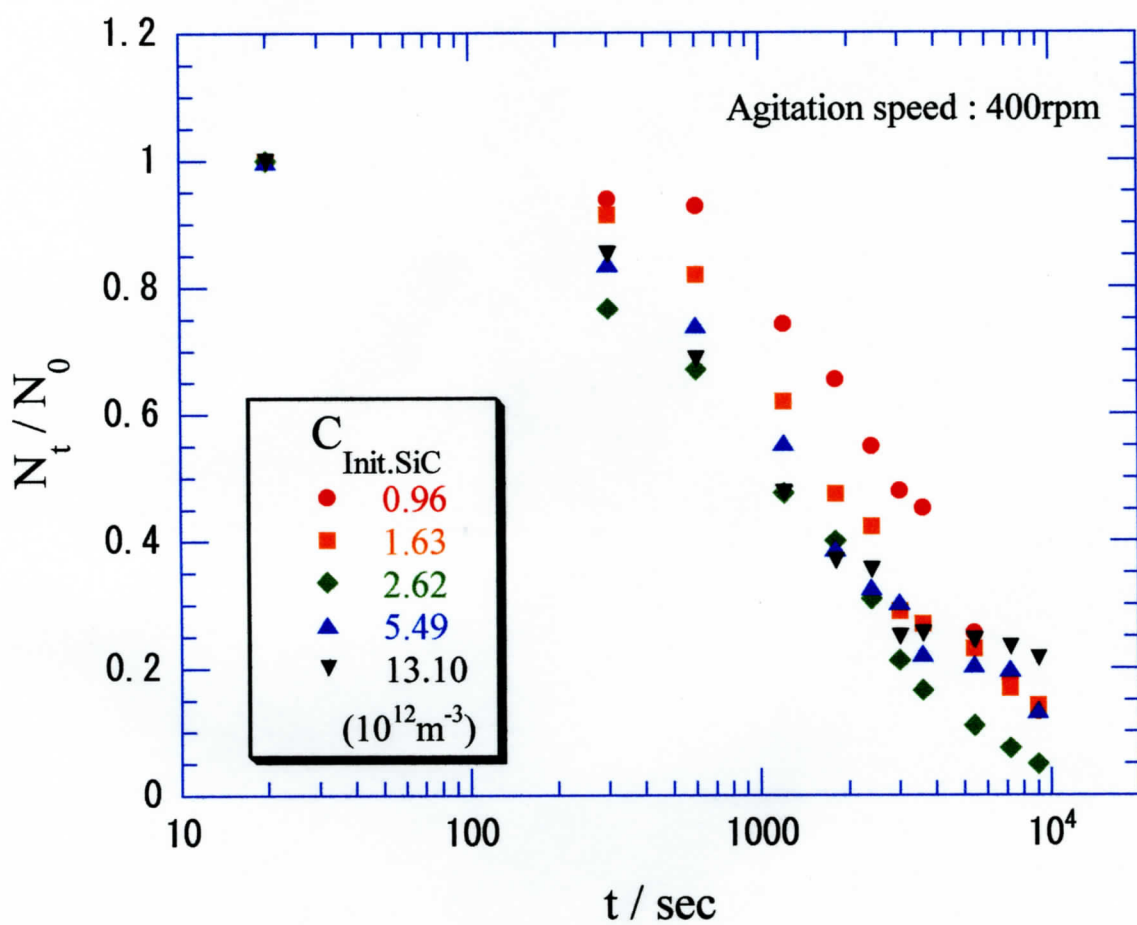


Fig.2.11 Coagulation curves for SiC particles.

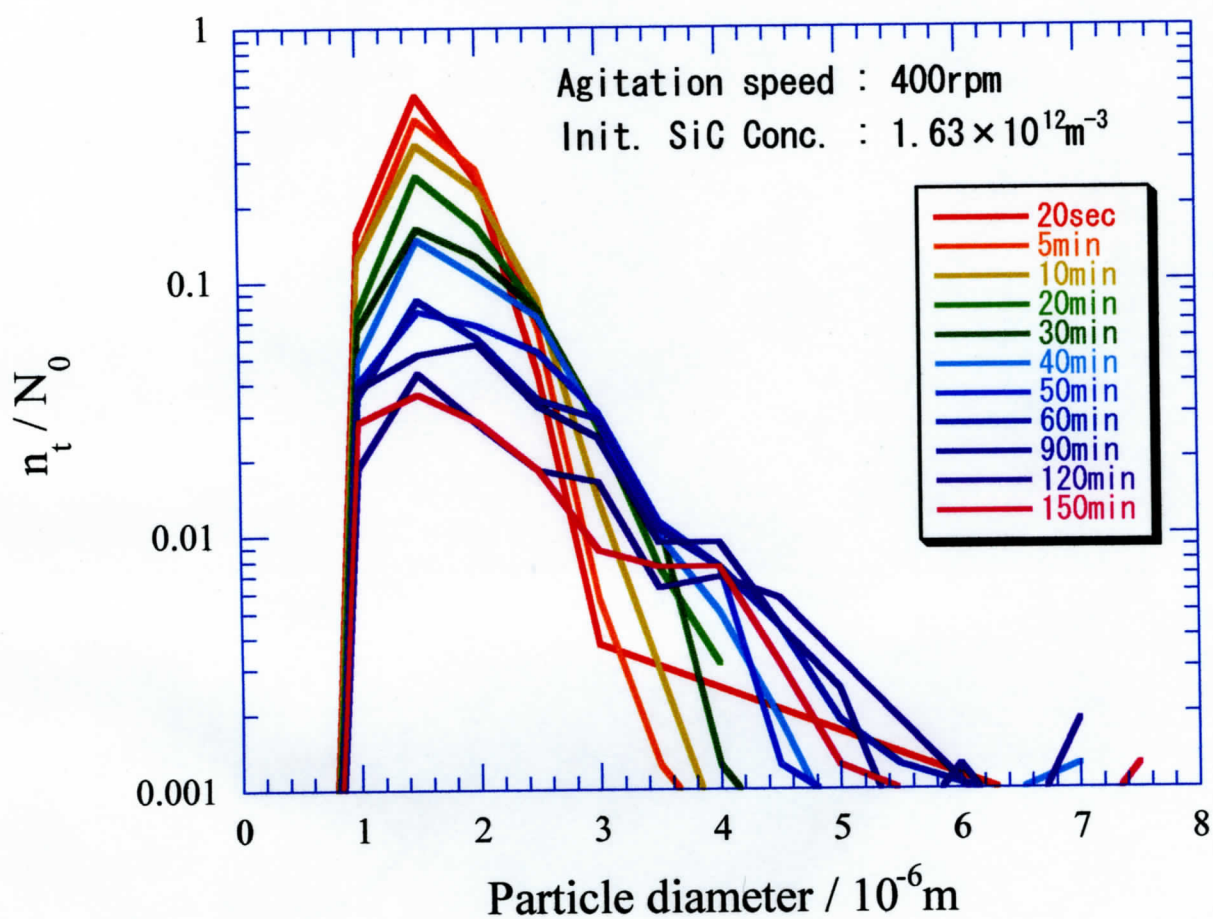


Fig.2.12 SiC particle size distributions of low particle concentration.

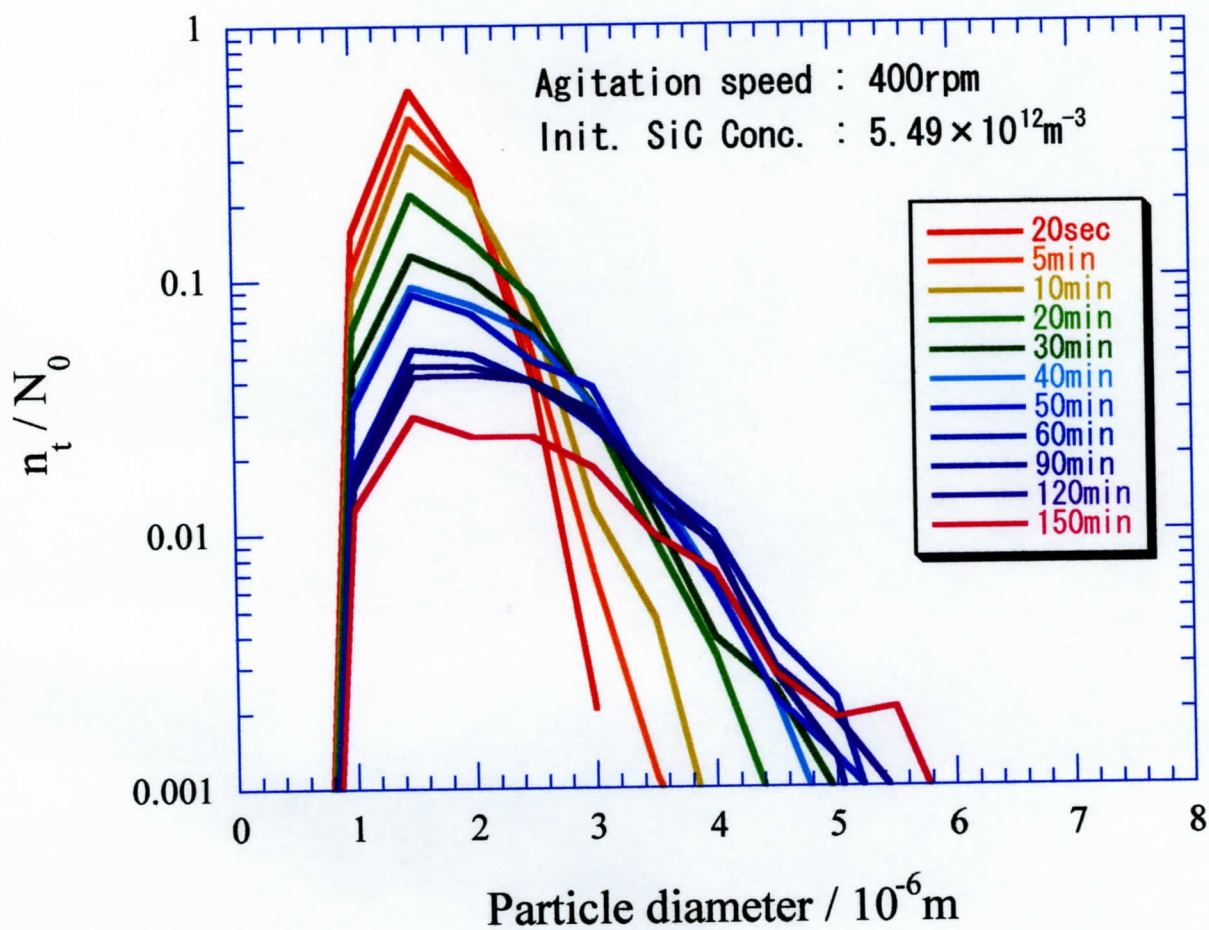


Fig.2.13 SiC particle size distributions of middle particle concentration.



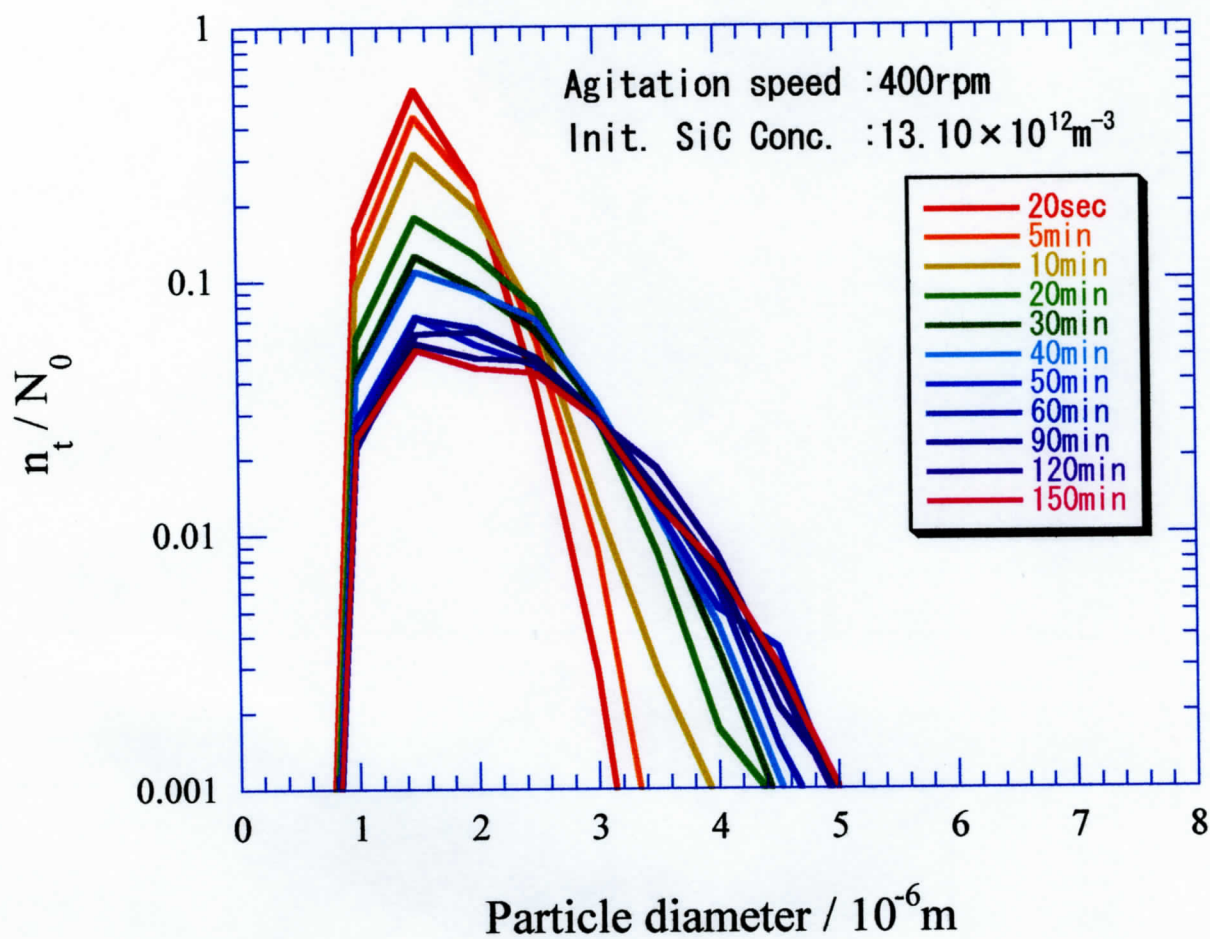


Fig.2.14 SiC particle size distributions of high particle concentration.

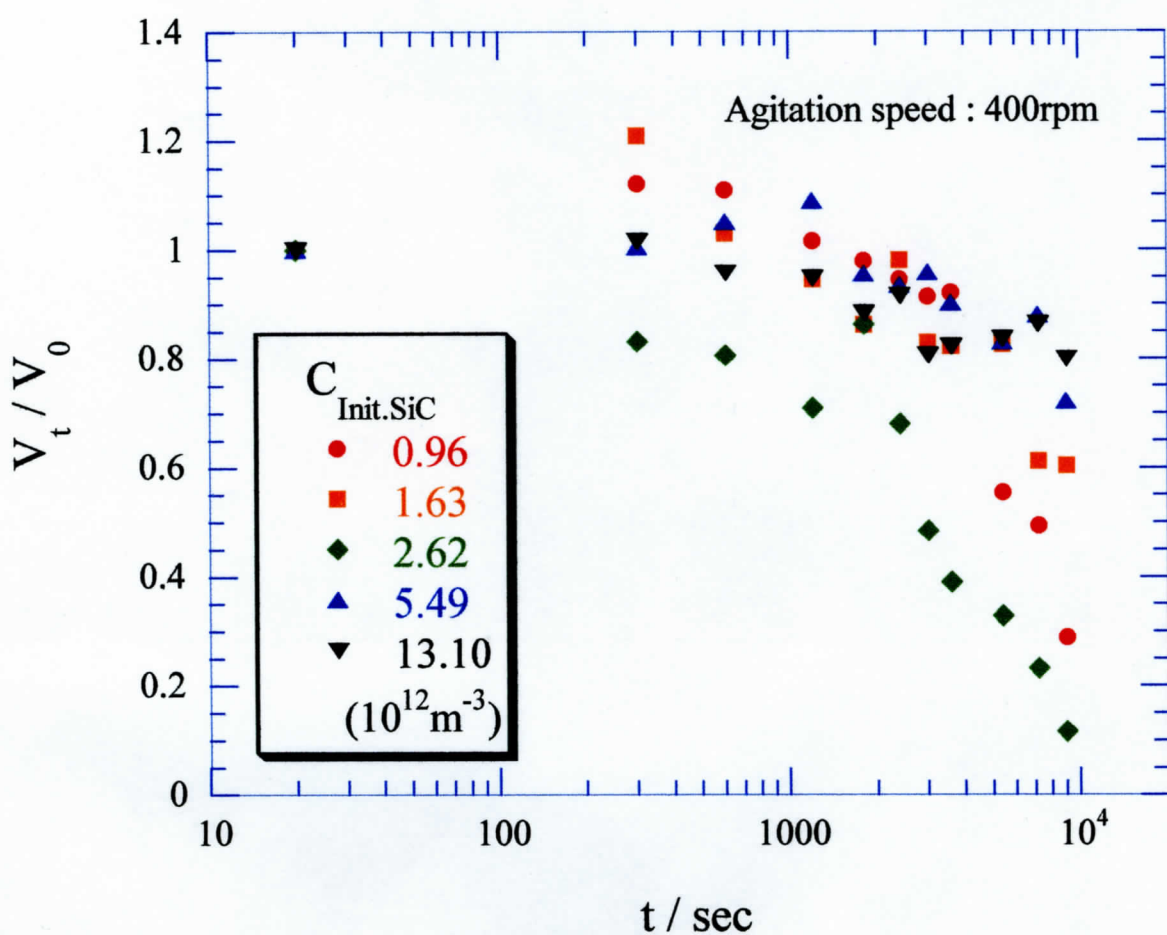


Fig.2.15 Change in volume variations of SiC particles.

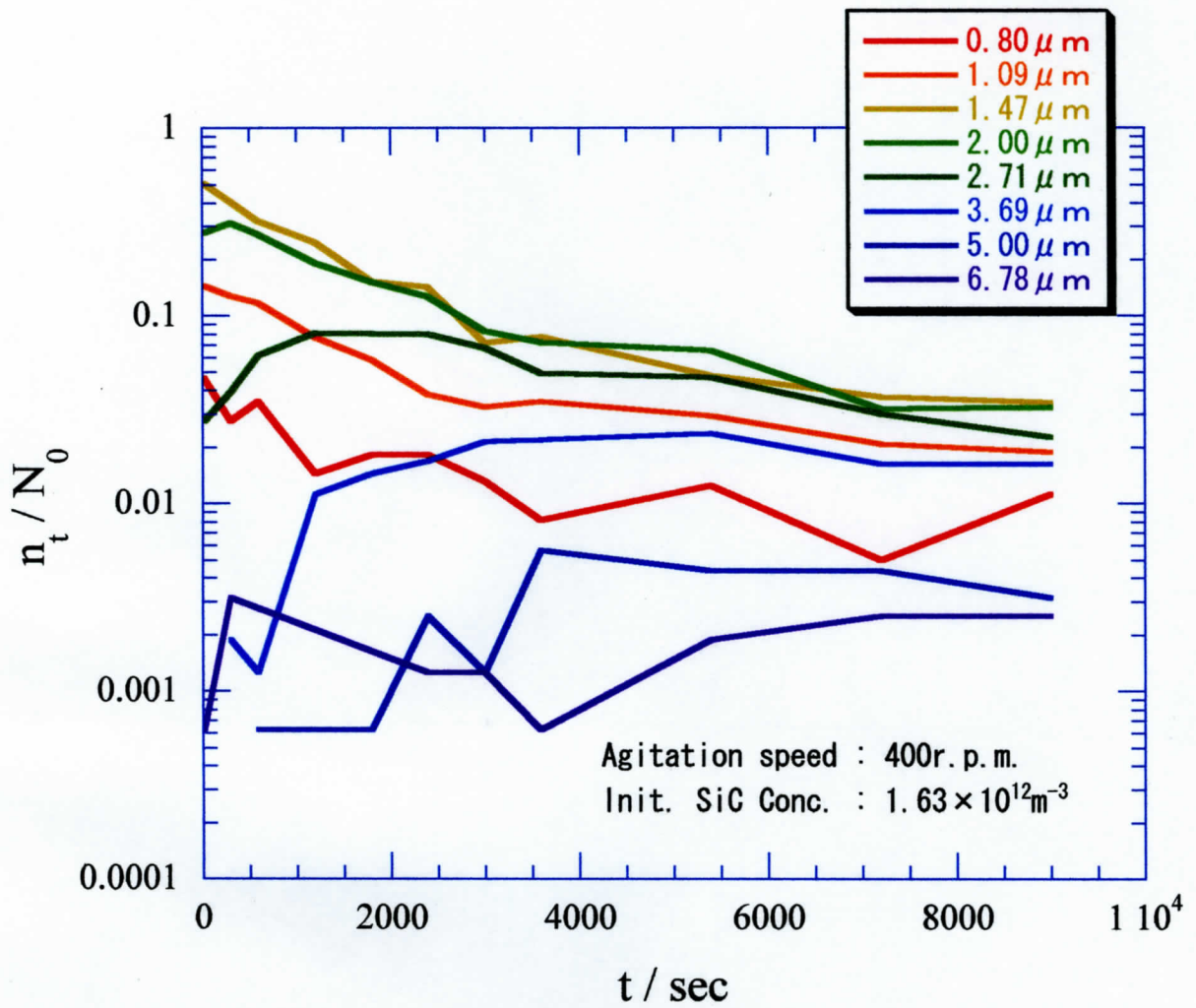


Fig.2.16 Change in SiC particle size variations of low particle concentration.



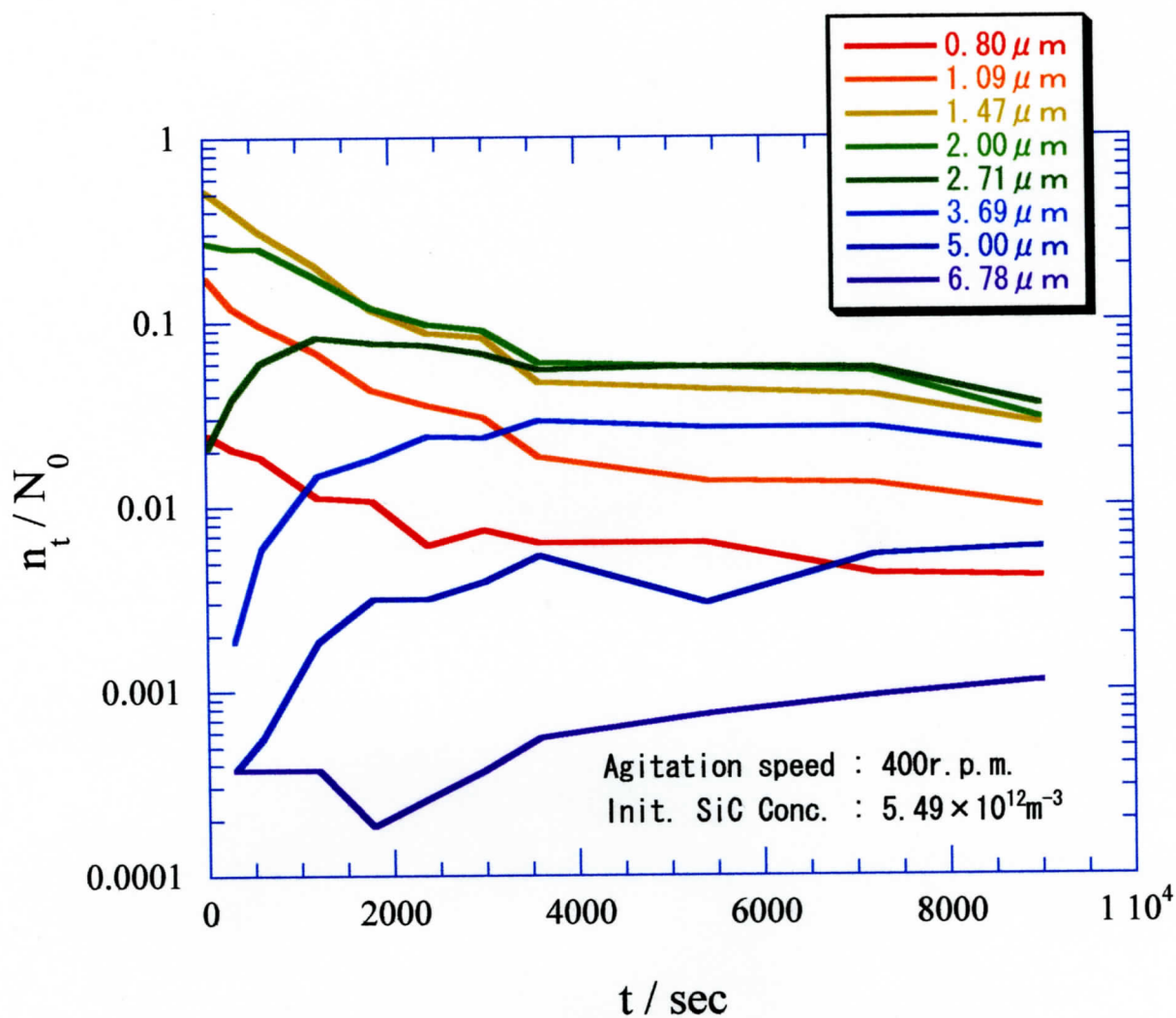


Fig.2.17 Change in SiC particle size variations of middle particle concentration.

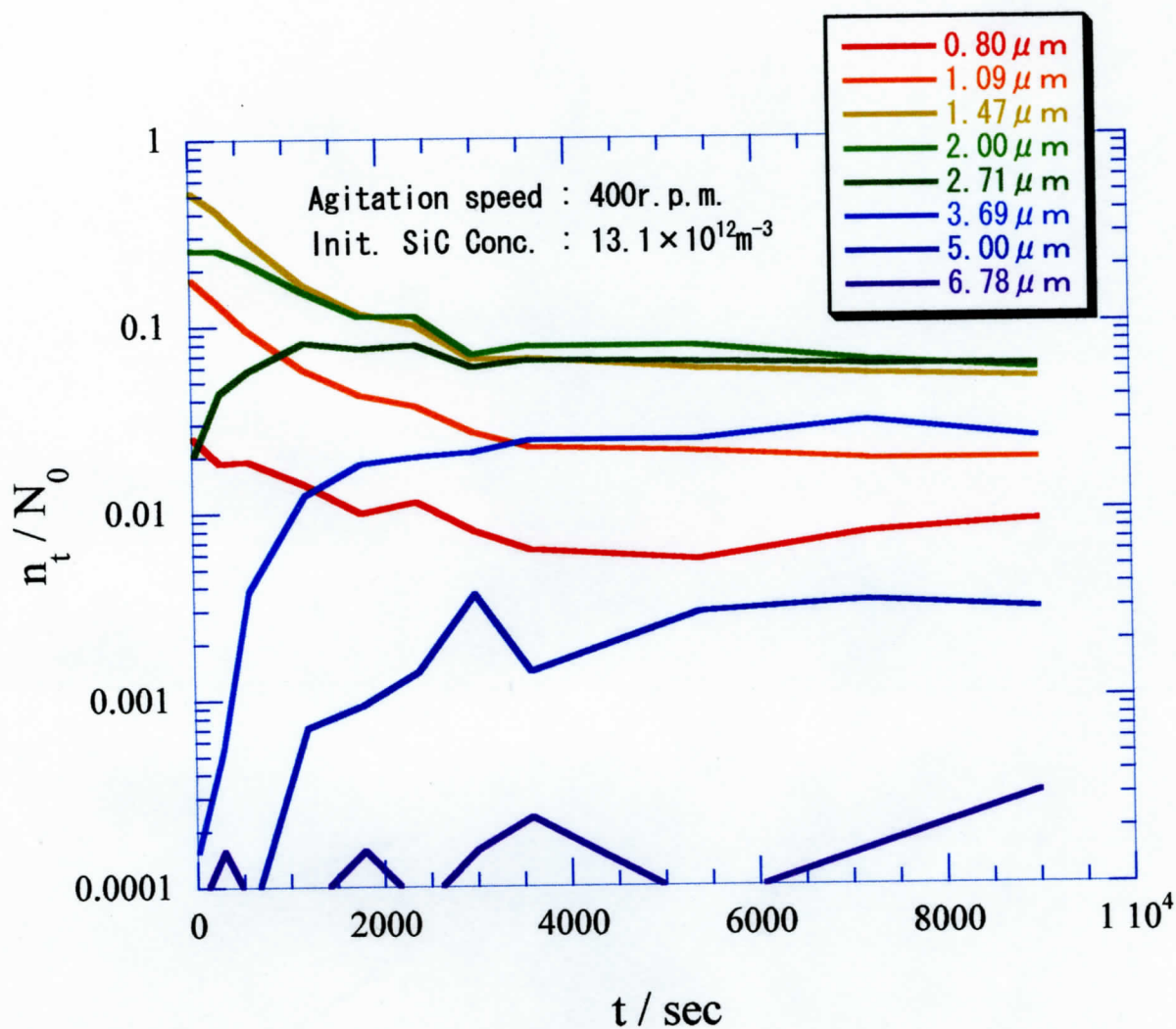


Fig.2.18 Change in SiC particle size variations of high particle concentration.

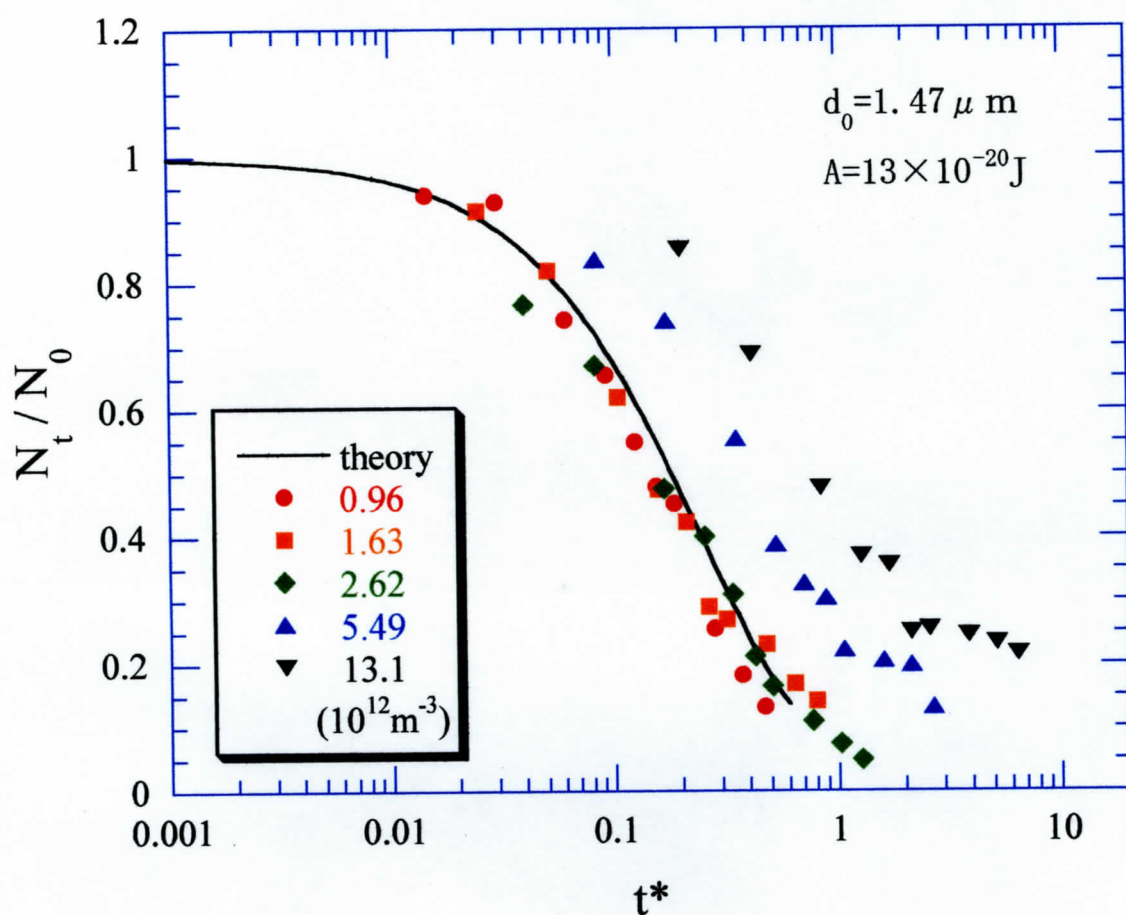


Fig.2.19 Normalized coagulation curves for SiC particles.

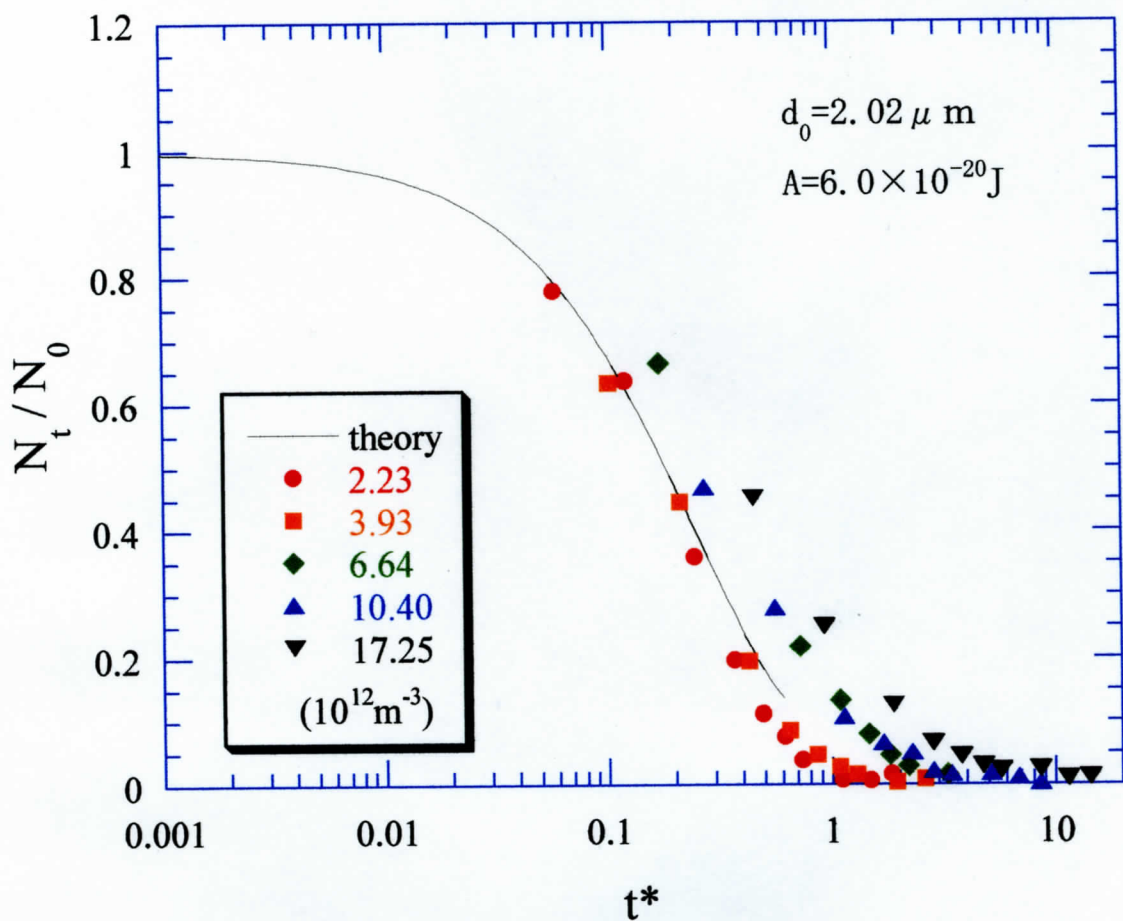


Fig.2.20 Alternative normalized coagulation curves for PSL particles.

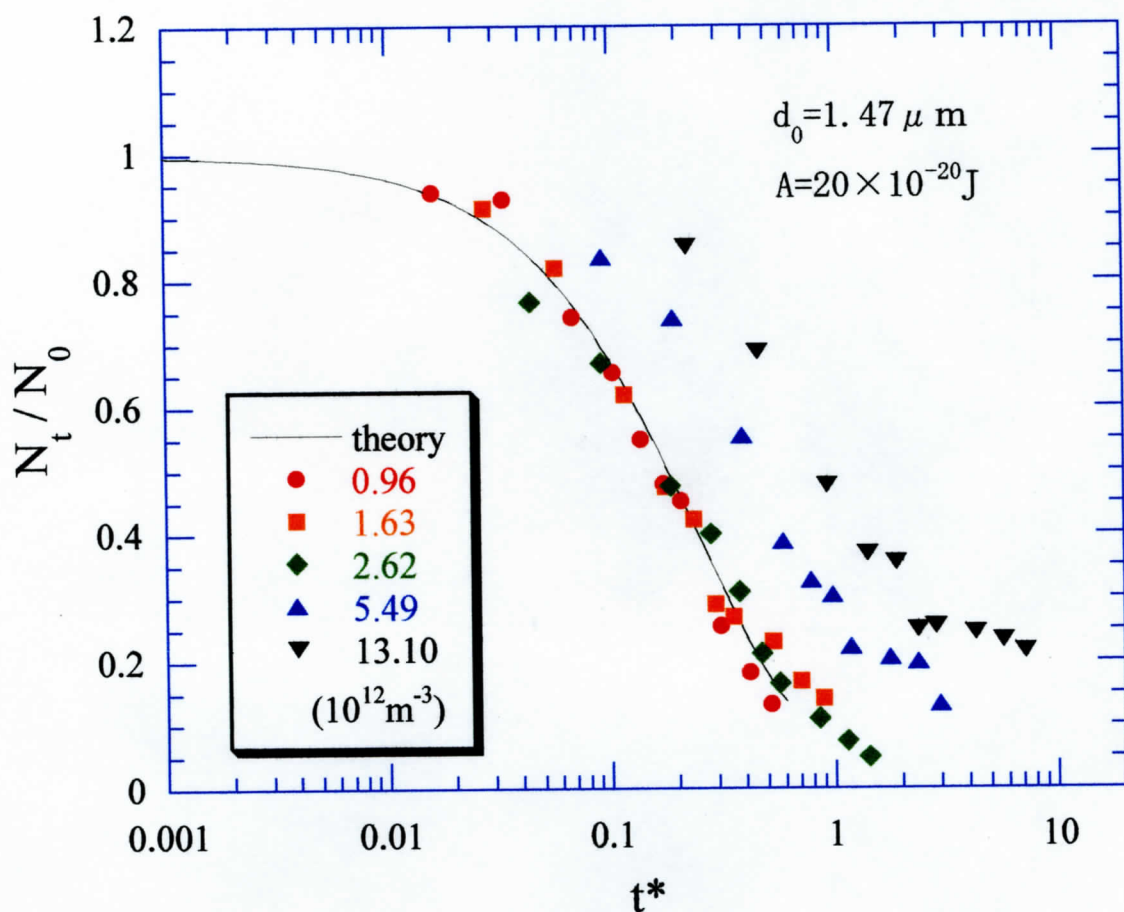


Fig.2.21 Alternative normalized coagulation curves for SiC particles.

### 3 水モデルによる乱流凝集実験に関する数値計算

#### 3-1 数値計算法

懸濁液中で衝突した粒子が全て凝集すると仮定する場合、 $k$  個凝集した粒子の濃度変化は以下のポピュレーションバランスの式(Eq.3-1)により表せることが分かっている。

$$\begin{aligned}\frac{dn_k}{dt} &= \frac{1}{2} \sum_{i=1, i+j=k}^{i=k-1} N_{ij} - \sum_{i=1}^{\infty} N_{ik} \\ &= \frac{1}{2} \sum_{i=1, i+j=k}^{i=k-1} \alpha [1.3R_{ij}^3 (\varepsilon/\nu)^{1/2} n_i n_j] - \sum_{i=1}^{\infty} \alpha [1.3R_{ik}^3 (\varepsilon/\nu)^{1/2} n_i n_k]\end{aligned}\quad (3-1)$$

この式は液中に存在する全ての粒子に対して計算を行うものである。この計算においては、初期に粒子は全て単一粒径  $a_1$  で、 $N_0$  個存在していると仮定する。例えば、初期粒子が最大 3000 個で構成される凝集体まで考察する時には、それぞれの凝集体において 3000 元の連立方程式を解く必要があり、計算には膨大な時間が必要となることが明らかである。

そこで、本研究では計算時間の短縮が可能な grouping モデルを構築し、ポピュレーションバランスの式を連立して解いた結果との比較を行うことでその妥当性を検証し、その後、本研究で得られた実験結果との比較、検討を行う。

#### grouping モデル

grouping モデルではポピュレーションバランスとは異なり、粒子を  $a_1 \sim a_N$  までの異なる代表粒径を持つ  $N$  個のグループに分割し、グループ間での粒子数の収支を計算する。しかし、そのままでは粒子総数の収支が合わなくなるので、隣接するグループ間の体積比  $V_k/V_{k-1}$  を一定し、各グループの代表半径を定め、その代表半径に基づく全粒子体積が常に一定となるように各粒子数に補正を行う。このためグループ間の体積比により各グループに含まれる粒径の範囲が定まるが、大きなグループになるほど含まれる粒径の範囲が広がっていくために、大粒径になるほど粒子数変化の計算負荷が緩和されるようになる。

grouping モデルでの計算は Eq.3-1 と異なりグループ間の衝突のみを考慮し、衝突により新たに生成した凝集体の粒子数増加分は生成した粒径に応じて適当なグループに割り振られ、そのグループでの粒子数増加となる。これにより grouping モデルは以下のように表される。



$$\begin{aligned} \frac{dn_k^*}{dt^*} = & \frac{1}{2} \sum_{i=i_{c,k-1}}^{k-1} \xi_{i,k-i} (a_i^* + a_{k-i}^*)^3 n_i^* n_{k-i}^* \\ & + \sum_{i=i}^{i_{c,k-1}} \zeta_{i,k} (a_i^* + a_k^*)^3 n_i^* n_k^* - \sum_{i=i_{c,k}}^N (a_i^* + a_k^*)^3 n_i^* n_k^* \end{aligned} \quad (3-2)$$

ここで  $a_i^* = a_i/a_{av}$  ( $a_{av}$  は初期粒径の平均値)、 $\xi$  及び  $\zeta$  は粒子の体積を保存するための補正係数であり、以下のように表すことができる。

$$\xi_{i,k-1} = \frac{V_i + V_{k-1}}{V_k}, \quad \zeta_{i,k} = \frac{V_i}{V_k}$$

隣接するグループ間の体積比  $V_k/V_{k-1}$  は計算にあたり重要な値となるが、この値には閾値が存在する。初期状態で、粒子は全て単一粒径  $a_1^*$ 、体積  $v_1^*$  である場合、次のような条件が体積比に与えられる。

$$\begin{aligned} \frac{a_1^* + a_2^*}{2} & < (v_1^* + v_1^*)^{1/3}, \quad v_1^* = 1, \quad v_2^* = \frac{V_k}{V_{k-1}} \\ \therefore \frac{V_k}{V_{k-1}} & < 3.51 \end{aligned}$$

この条件よりも体積比  $V_k/V_{k-1}$  を大きくすると、初期粒子がどんなに凝集しても、その凝集体の半径は第一グループと第二グループの閾値となる両者の算術平均半径よりも大きくなり、凝集現象を表すことができない。なお、本研究では体積比を 2.5 として計算を行った。

**Table 3-1** にグループ数を 10、グループ間体積比を 2.5 にしたときのグループの代表体積 ( $v^*$ )、及びこれから求められるグループの代表半径 ( $a^*$ )、そして凝集により新たに生成する凝集体の体積及びその半径を示した。このとき、実際の計算において行われる数値計算は 10 元連立方程式となり、同数の粒子に関する Eq.3-1 を解くのに比べ、計算時間が非常に短縮される。

初期粒子を粒径  $a_1^*$  の単一粒径とし、最大の凝集体が初期粒子 2500 個分として **Table 3-1** に従った grouping モデルによって計算した粒子総数の経時変化と Eq.3-1 により計算された粒子総数の経時変化との比較を Fig.3.1 に示す。また、grouping モデルでの各グループの粒子数の経時変化を Fig.3.2 に、Eq.3-1 による grouping モデルのグループに対応する各粒径の粒子数の経時変化を Fig.3.3 に示す。図から明らかなように双方の計算結果は粒子総数については極めてよ

く一致した。また、各グループの粒子数の経時変化では、大粒径域のグループにおいて Eq.3-1 からの偏倚が若干大きくなることが示されたが、小粒径域のグループでは Eq.3-1 の結果との差異はほとんどなく grouping モデルの有用性が示されている。大粒径において誤差が大きくなるのは、グループ間の体積比で各グループに補正を加える際に、大粒径域では広範囲の粒径が一つのグループに含まれるため誤差が生じるものと考えられ、この体積比が計算にあたり重要となる。

以上、体積比を 2.5 とした本 grouping モデルは若干の誤差はみられるもののポピュレーションバランスの結果をほぼ表すことができ、本実験結果の解析には十分適用可能なことが明らかになり、以下、このモデルを用いて実験結果との比較、検討を行う。

## 3-2 考察

### 3-2-1 PSL 粒子の凝集現象に対する考察

本研究における PSL 粒子の実験結果を grouping モデルで解析する。この際、前述したように、実験結果には粒子の浮上除去を考慮する必要がある。

まずここでは、粒子の浮上が終末浮上速度により、自由表面から系外へ排出されると考えよう。浮上分離を考慮した grouping モデルの式は以下のように表される。

$$\begin{aligned} \frac{dn_k^*}{dt^*} = & \frac{1}{2} \sum_{i=i_{c,k-1}}^{k-1} \xi_{i,k-i} (a_i^* + a_{k-1}^*)^3 n_i^* n_{k-1}^* \\ & + \sum_{i=i}^{i_{c,k-1}} \xi_{i,k} (a_i^* + a_k^*)^3 n_i^* n_k^* - \sum_{i=i_{c,k}}^N (a_i^* + a_k^*)^3 n_i^* n_k^* - F n_k^* \end{aligned} \quad (3-3)$$

ここに、

$$F = \lambda \frac{2ga_k^2(\rho_L - \rho_p)}{\alpha[1.3a_1^3(\varepsilon/\nu)^{1/2}]N_0} \frac{A_{\text{vessel}}}{V_{\text{vessel}}} \quad (3.4)$$

ここで  $A_{\text{vessel}}$ 、 $V_{\text{vessel}}$  は攪拌槽の自由表面の面積、及び攪拌槽の体積である。 $\lambda$  は計算値を実測値とフィットさせるために導入した粒子浮上の補正係数である。

さて、全粒子体積の減少は系外への粒子の排出がない場合には理論的には起こりえない。そこで Hamaker 定数が真に正しいものであれば全粒子体積は常に一定であり、Fig.2.9 で示したような実験中での大幅な体積の減少はありえない。



このため、実験より得られた Hamaker 定数は理論的に大きく推算されていると考えられる。そこで、計算では Lifshitz の巨視的理論による Hamaker 定数  $1.0 \times 10^{-20} \text{J}$  を使用して浮上の影響を見る。このように Hamaker 定数を一意的に定めることでフィッティングを行うパラメータを補正係数  $\lambda$  のみにすることができる。

Fig.3.4 に補正係数  $\lambda$  を種々変化させ、実験で得られた全粒子体積とのフィッティングを行った結果を示す。Figure3.4 に示されるように補正係数  $\lambda$  が 400 の場合に全粒子体積の曲線とほぼ一致した。一方、補正係数  $\lambda$  を種々変えて求めた凝集曲線を Fig.3.5 に示す。図より、 $\lambda = 400$  の場合にほぼ凝集曲線が一致している。

次に  $\lambda = 400$  の場合の粒径分布の経時変化を Fig.3.6 に示した。実測の Fig.2.6 と比較すると、計算値の分布の幅は実測値より狭くなっているが、小粒径の粒子数の経時変化はよく表されている。一方、大粒径の粒子数が実測値より著しく速く減少しているのは、粒子分離速度（浮上速度）を粒径の 2 乗に比例すると仮定したため、大粒径の分離速度を過大評価したものと思われる。 $\lambda = 400$  なる値は、明らかに粒子の自由浮上による分離機構が実際と適合しないことを示しており、乱流の流れなどの影響の拠るところが大きいことが明らかとなった。

### 3-2-2 SiC 粒子の凝集現象に対する考察

#### (1) 凝集粒子の分裂を考慮しない場合

PSL 粒子の場合には初期粒子が単一粒径の場合について考察を行った。しかし、SiC 粒子は初期粒径分布を持つことから、grouping モデルの複数のグループにまたがって初期粒子の粒子数分布を与える。計算では初期粒径分布の測定結果をもとに grouping モデルに適合する初期粒子数分布を与えた。

また、grouping モデルでは  $V_k/V_{k-1} = 2.5$ 、最大グループを 8 グループとし、Hamaker 定数は  $13 \times 10^{-20} \text{J}$  とした。これによる粒径分布の経時変化に関する計算結果を Fig.3.7～Fig.3.9 に示す。計算結果では初期粒子数が少ないものから多いものに移行するにつれて、短時間側での大粒径の粒子数増加が極めて速くなっていくことが示される。加えて、時間が経つにつれて最大グループの割合のみ一定となり、他の全グループが減少していく。この現象は初期粒子数が多くなるにつれ、顕著になる。以上の点でこの数値計算は実験結果 Fig.2.16～Fig.2.18 と大きく異なっている。これは凝集した粒子が実験中に分裂することを全く考慮していないためと思われる。

#### (2) 凝集粒子の分裂を考慮した場合

次に、分裂を考慮したモデルを考える。モデルには、以下の 3 つが考えられた。

① モデル【1】：第 9 グループの粒子は実験結果に全く表れなかったために、この第 9 グループの粒子が全て分裂すると考えた。また、分裂後の粒子は、統計的に均等に分布すると仮定した。計算結果を Fig.3.10～Fig.3.12 に示す。この分裂形態は、分裂粒子の体積を均等に各グループに分割させるため、小粒径域のグループでは時間とともに粒子数が増加してしまい、その粒子数は実験結果よりも高くなってしまう。粒径分布の経時変化の実験結果からもわかるように、小粒径域のグループは時間とともに減少していくので、このモデルでは、実現象モデルを忠実に表すことができなかった。

②モデル【2】：モデル【1】と同様に第 9 グループの粒子がすべて分裂することを考えたが、分裂後の粒子は全て初期の粒径分布に配分されると考えた。計算結果を Fig.3.13～Fig.3.15 に示す。凝集のみを考慮した計算結果 (Fig.3.7～Fig.3.9) に比べ、より実験結果に近くなっている。しかし、大粒径域のグループの長時間側での粒子数は、初期粒子数に依存せず、多いままである。実験結果から大粒径の粒子数は初期粒子数に依存しており、計算値はこのことを表しきれていない。

③モデル【3】：第 8 グループにある粒子は他の粒子との衝突により分裂し、分裂後の粒子は全て初期の粒径分布に配分されると考えた。

すなわち、第 8 グループの粒子が他の粒子と衝突する回数はそれぞれの粒子数の積に比例するので、粒子の分裂がこの衝突した数の一定の割合で起こると考えれば、分裂数は以下のように表せる。

$$(\text{分裂数}) = C \cdot N_8 \cdot N_{total} \quad (3-5)$$

ここで、 $N_8$ 、 $N_{total}$  はそれぞれ注目する時間における第 8 グループの粒子数と粒子総数である。 $C$  はフィッティングパラメータであり、この値は長時間側における第 8 グループの実測値より、 $C$  は  $3 \times 10^9$  とした。

この分裂数を grouping model の計算に加えることで、各粒径グループの粒子数の経時変化を求めることができ、その結果を Fig.3.16～Fig.3.18 に示す。図より最大径である第 8 グループの粒子数の経時変化は実測値と大略一致し、各粒径の経時変化についてもおおよそ一致している。しかし実際の粒子数の経時変化を厳密には表すことはできておらず、これについては今後、更なる検討が必要と考える。

### 3-3 結言

攪拌槽内の粒子凝集現象の数値計算を grouping モデルに基づいて行った。

PSL 粒子の実験で観察された粒子の浮上分離について終末浮上速度を考慮した grouping モデルにより計算を行った。計算結果からは終末浮上速度の影響は

少なく、乱流の流れなどの影響が大きいことが明らかとなった。

SiC 粒子では初期粒径分布を初期条件として計算を行った。凝集のみ考慮したモデルでは、粒径分布に関する実験結果を表すことはできなかった。そこで代粒径の粒子と他の粒子との衝突についてその一部が分裂すると考えることにより、実験結果の傾向をおおよそ表すことができた。

Table 3-1 Size grouping map

N	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10
V a	1.00 (1.00)	2.50 (1.36)	6.25 (1.84)	15.6 (2.50)	39.1 (3.39)	97.7 (4.61)	244 (6.25)	610 (8.48)	1526 (11.5)	3815 (15.6)
1.00 (1.00)	2.00 (1.26)	3.50 (1.52)	7.25 (1.94)	16.6 (2.55)	40.1 (3.42)	98.7 (4.62)	245 (6.26)	611 (8.49)	1527 (11.52)	3816 (15.63)
2.50 (1.36)		5.00 (1.71)	8.75 (2.06)	18.1 (2.63)	41.2 (3.46)	100 (4.64)	247 (6.27)	613 (8.49)	1528 (11.5)	3817 (15.6)
6.25 (1.84)			12.5 (2.32)	21.9 (2.80)	45.3 (3.57)	104 (4.70)	250 (6.30)	617 (8.51)	1532 (11.5)	3821 (15.6)
15.6 (2.50)				31.3 (3.15)	54.7 (3.80)	113 (4.84)	260 (6.38)	626 (8.55)	1542 (11.6)	3830 (15.7)
39.1 (3.39)					78.1 (4.27)	137 (5.15)	283 (6.57)	649 (8.66)	1565 (11.6)	3854 (15.7)
97.7 (4.61)						195 (5.80)	342 (6.99)	708 (8.91)	1624 (11.8)	3912 (15.8)
244 (6.25)							488 (7.87)	854 (9.49)	1770 (12.1)	4059 (16.0)
610 (8.48)								1221 (10.7)	2136 (12.9)	4425 (16.4)
1526 (11.5)									3052 (14.5)	5341 (17.5)
3815 (15.6)										7630 (19.7)

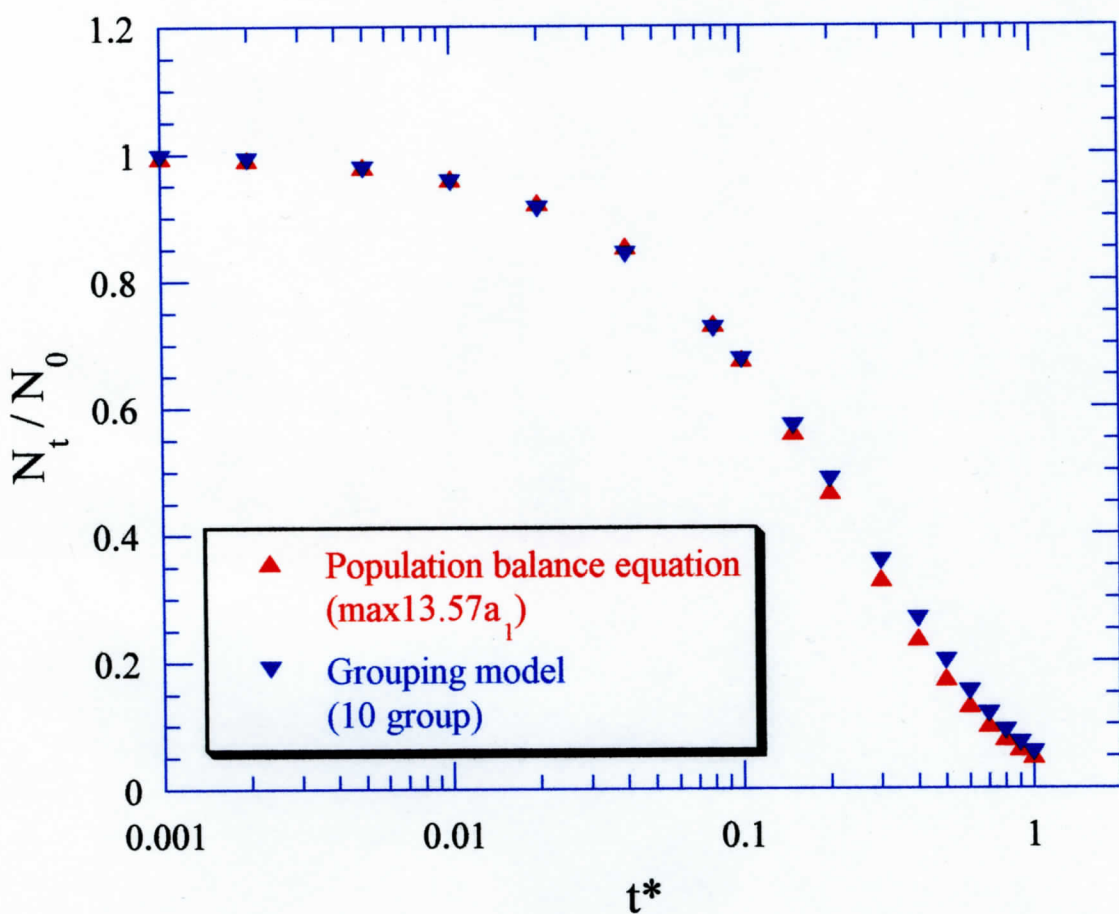


Fig.3.1 Comparison between population-balance and grouping model.

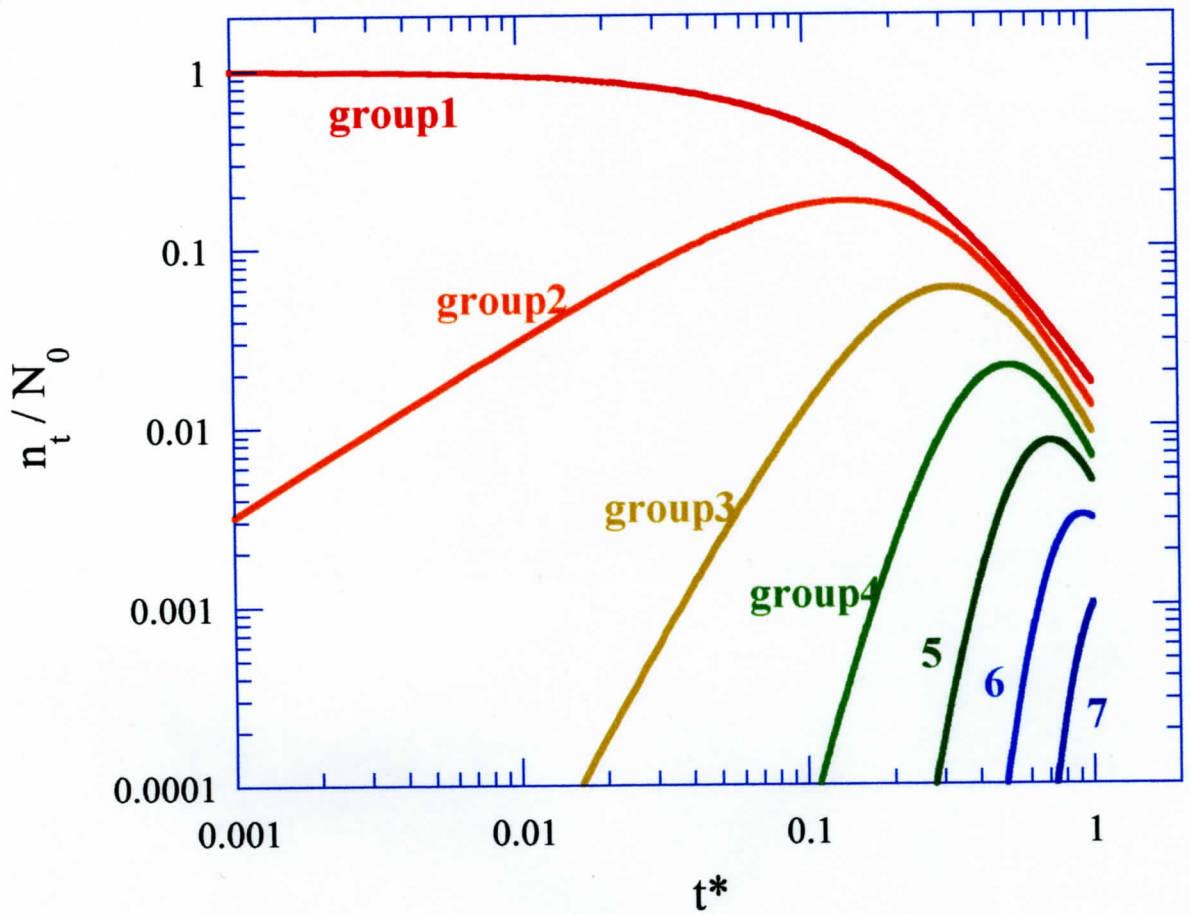


Fig.3.2 Particle size distributions with grouping model.

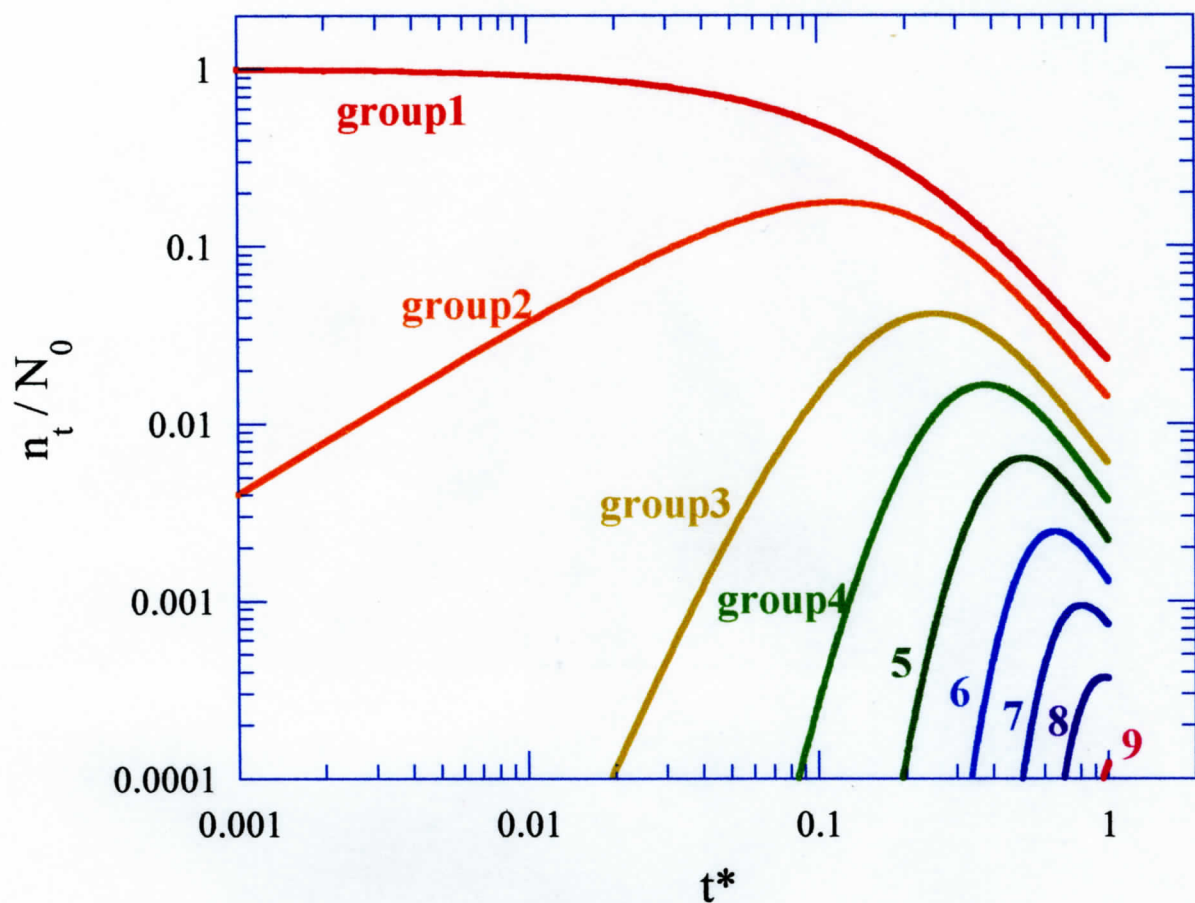


Fig.3.3 Particle size distributions with population-balance.



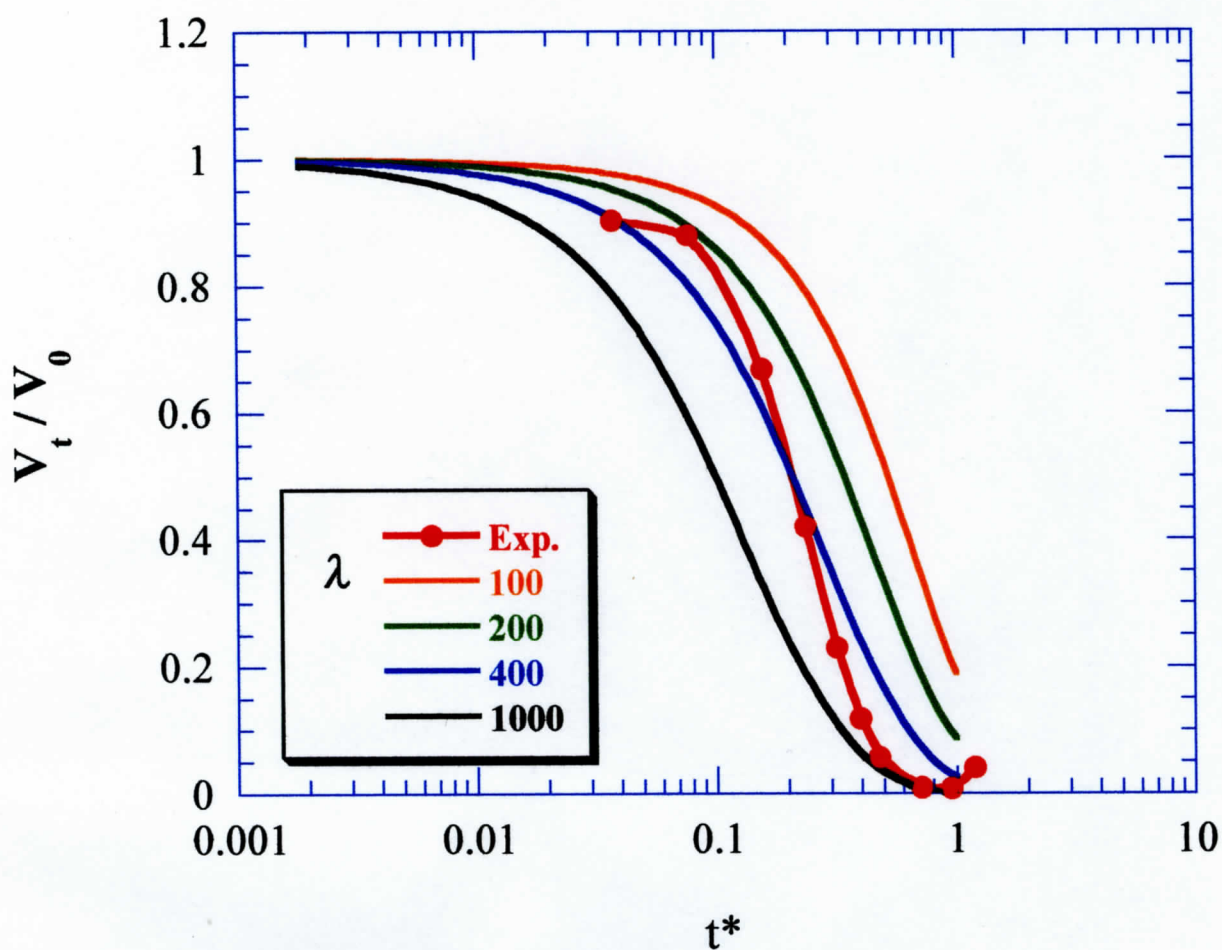


Fig.3.4 Calculated change in volume variations with each coefficient.

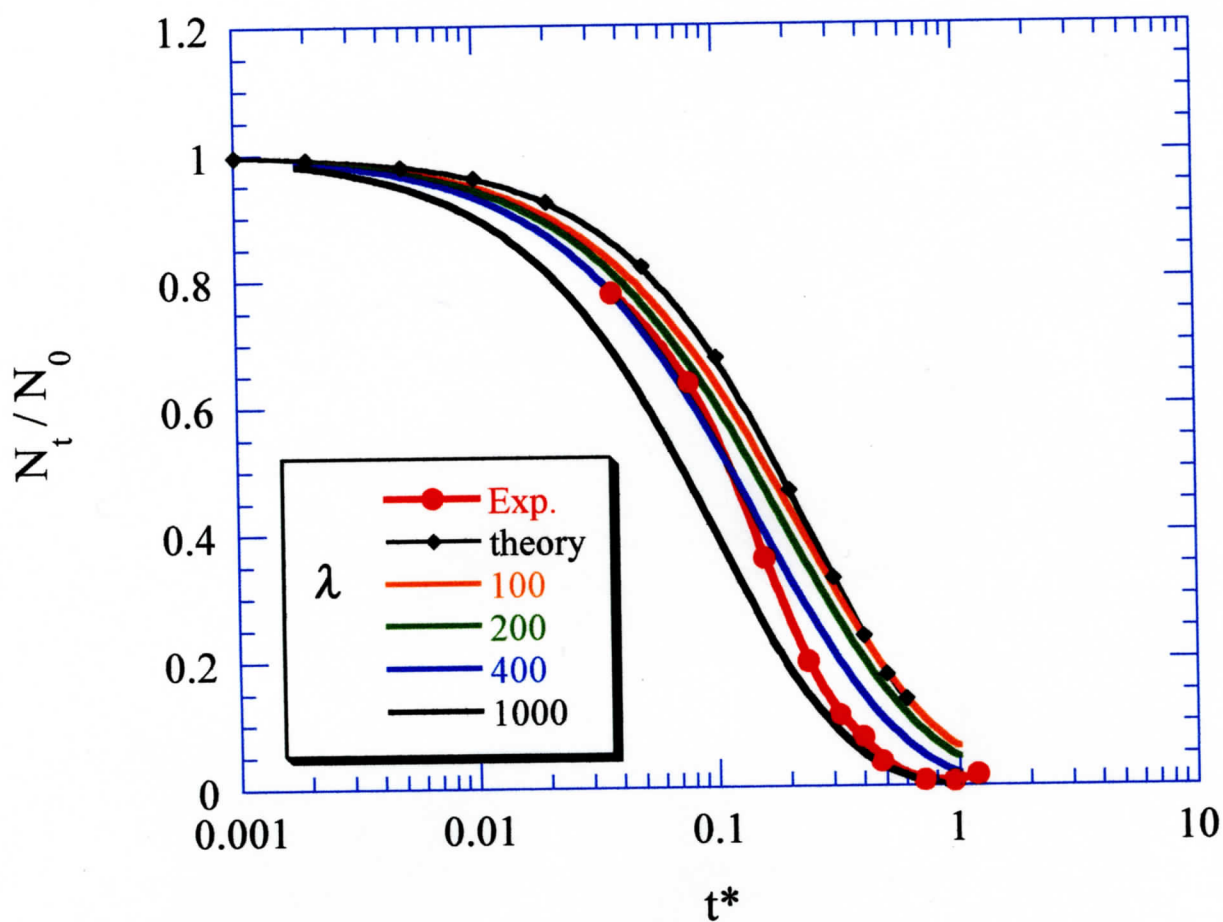


Fig.3.5 Calculated coagulation curves with each coefficient.

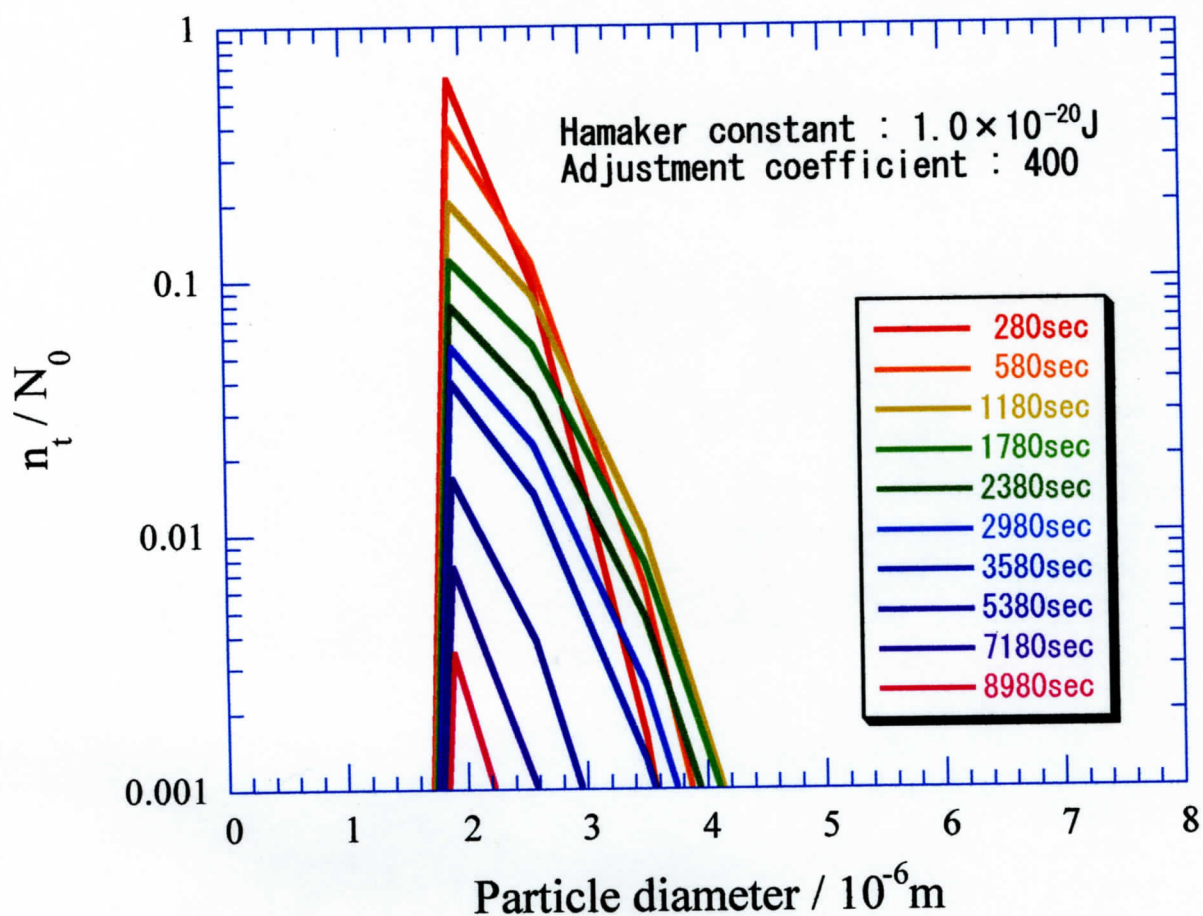


Fig.3.6 Calculated particle size distributions with adjustment coefficient.

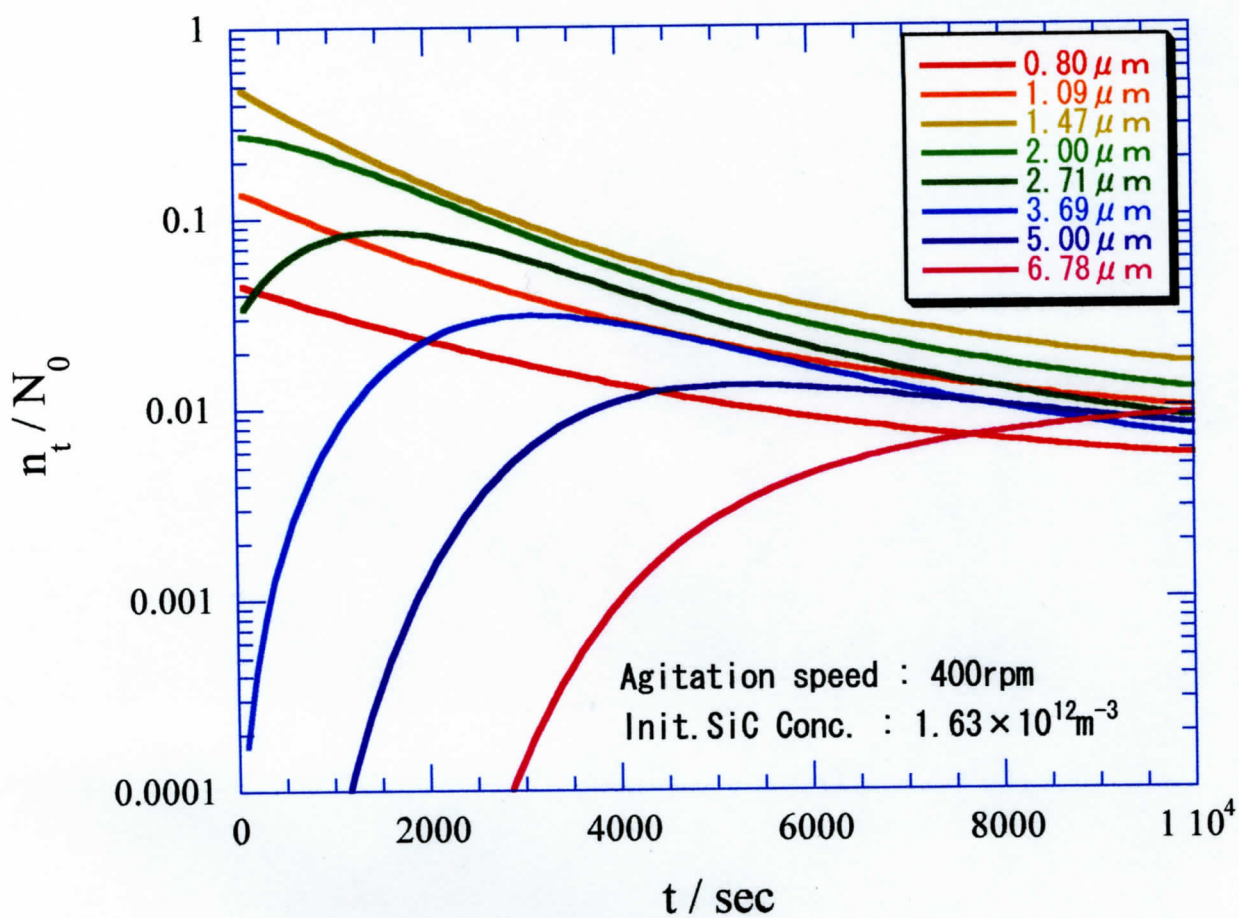


Fig.3.7 Calculated result of low particle concentration with coagulation model.

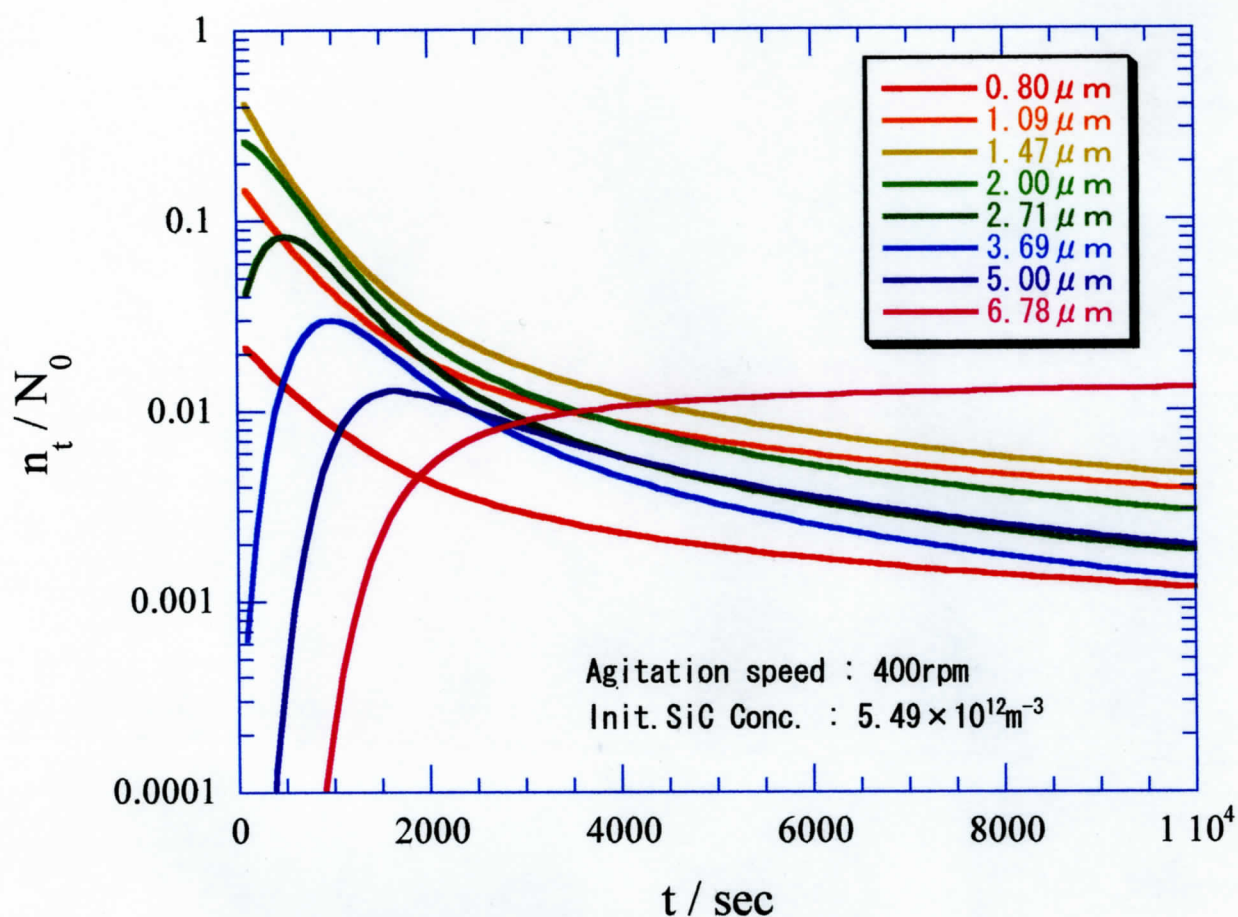


Fig.3.8 Calculated result of middle particle concentration with coagulation model.



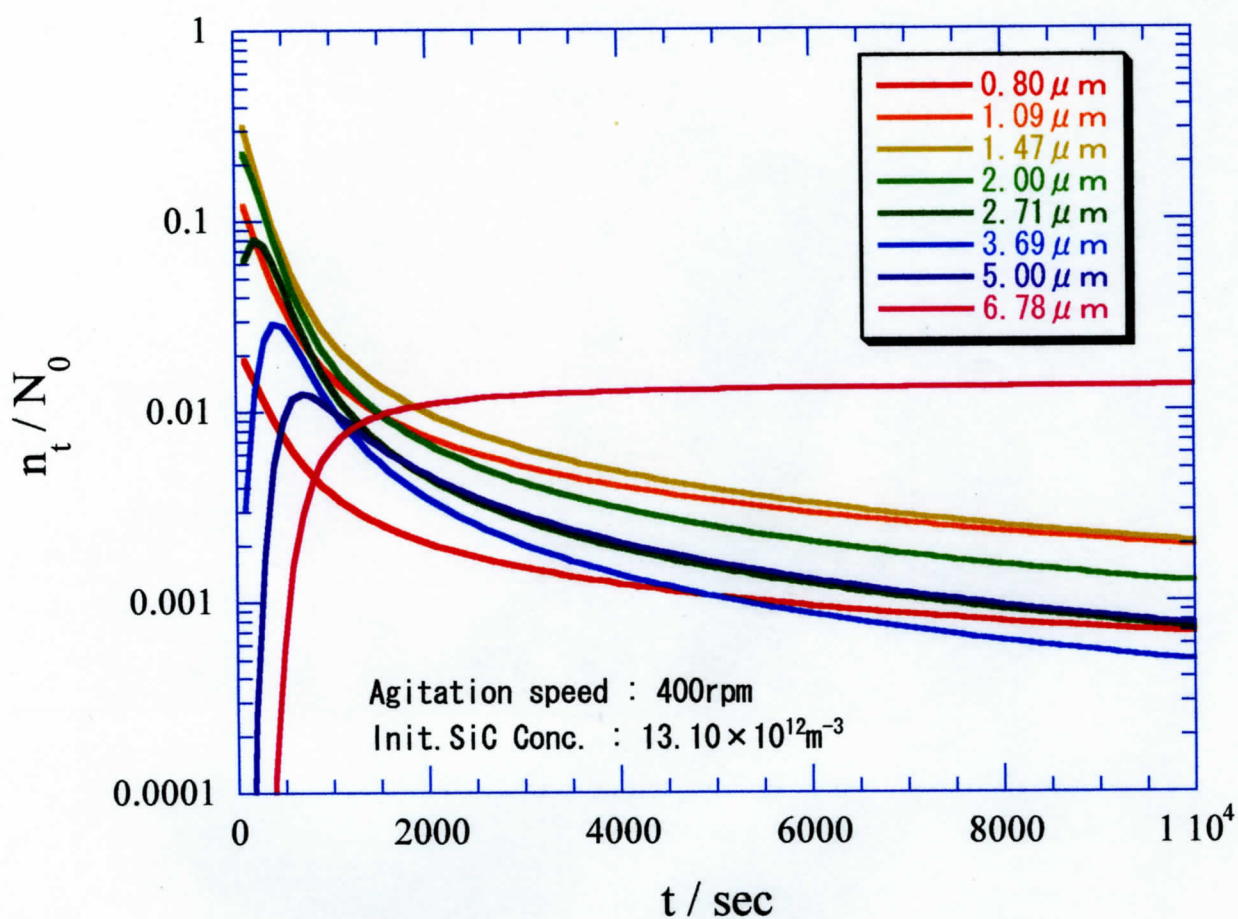


Fig.3.9 Calculated result of high particle concentration with coagulation model.



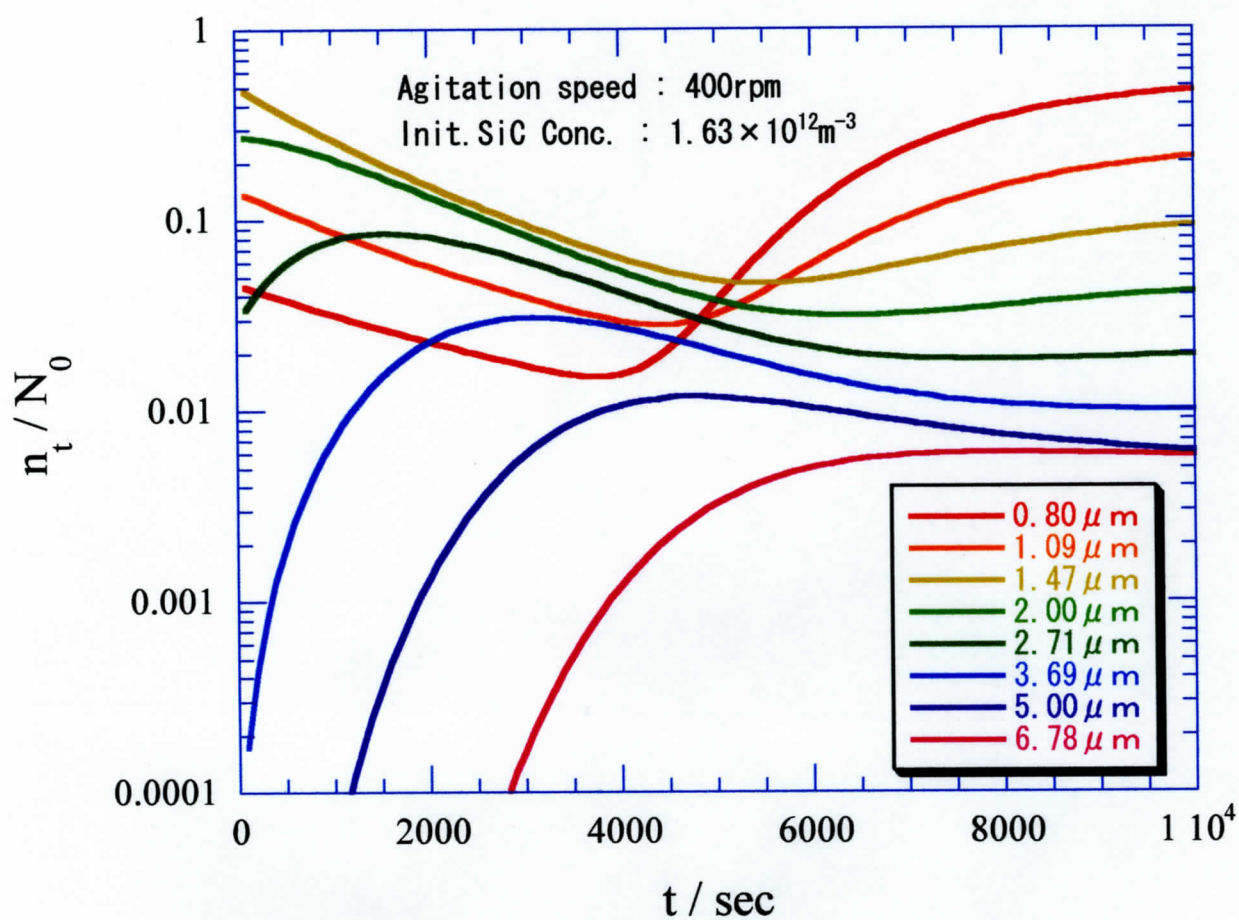


Fig.3.10 Calculated result of low particle concentration with model[1].

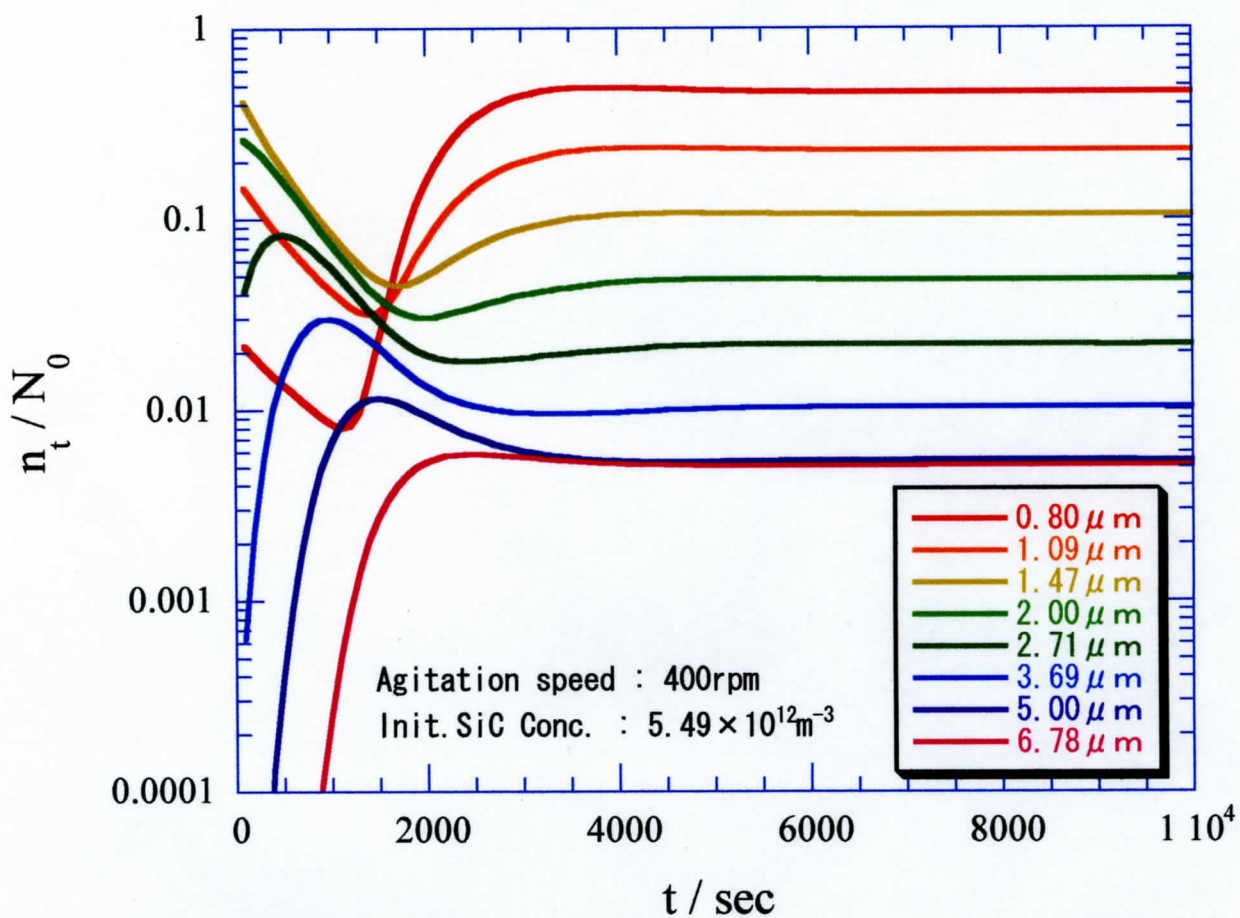


Fig.3.11 Calculated result of middle particle concentration with model[1].

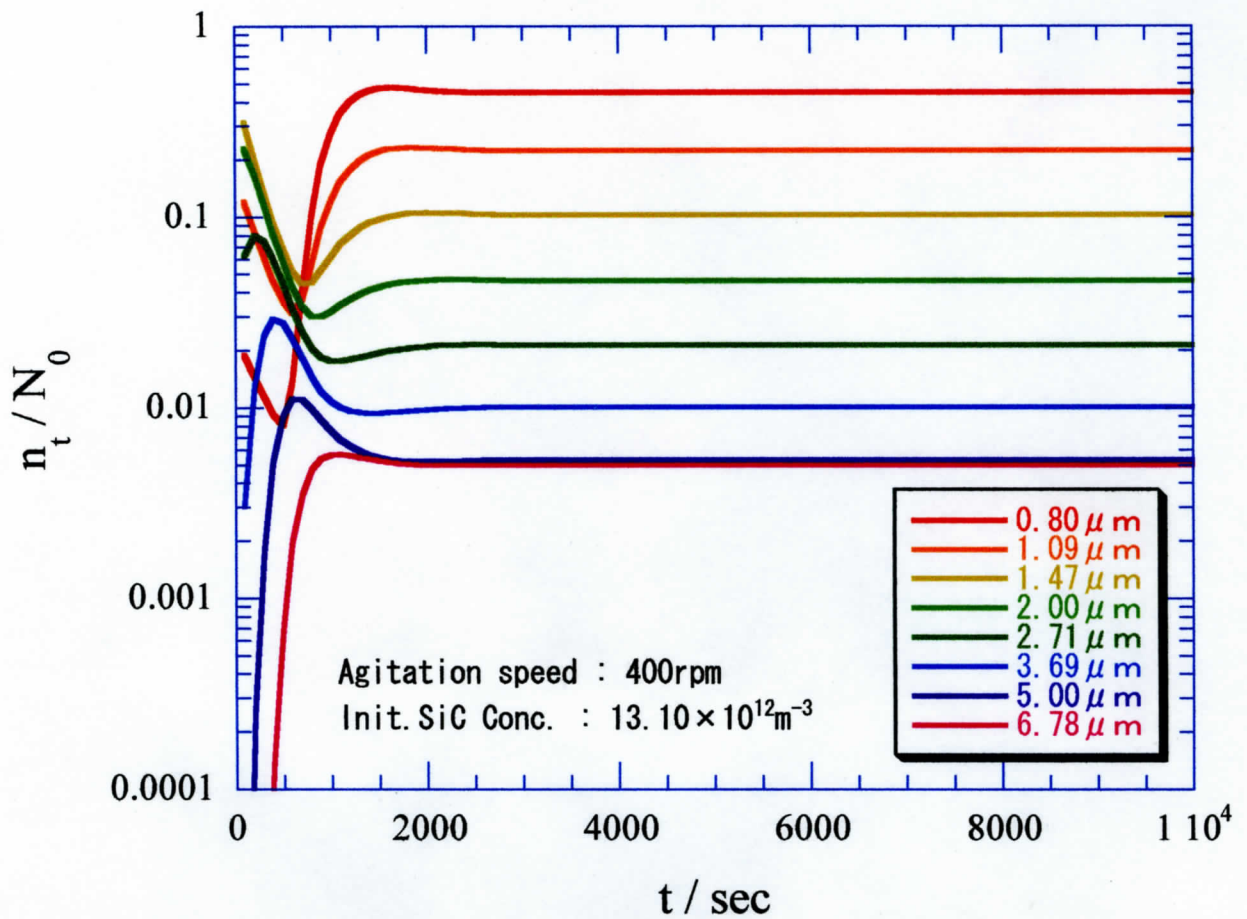


Fig.3.12 Calculated result of high particle concentration with model[1].

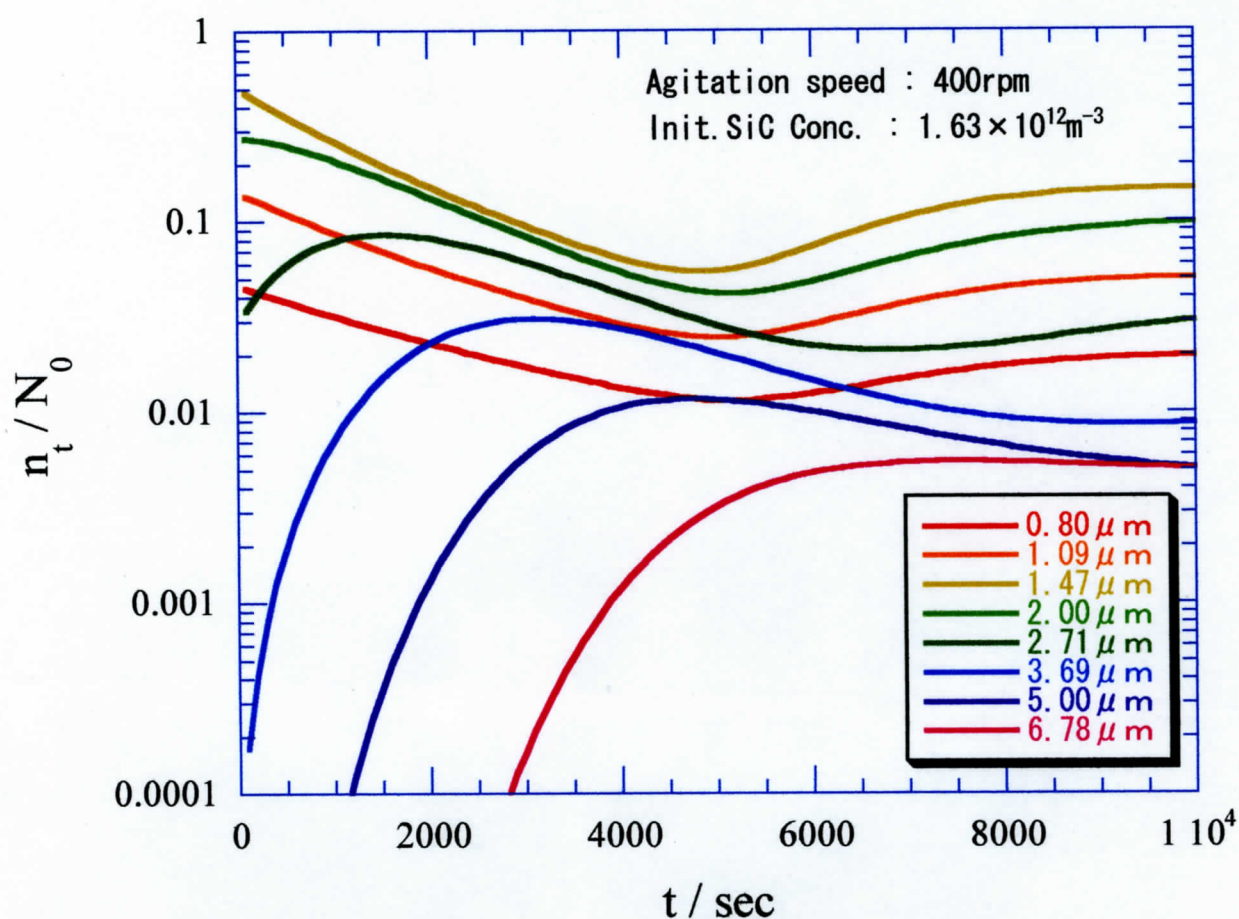


Fig.3.13 Calculated result of low particle concentration with model[2].



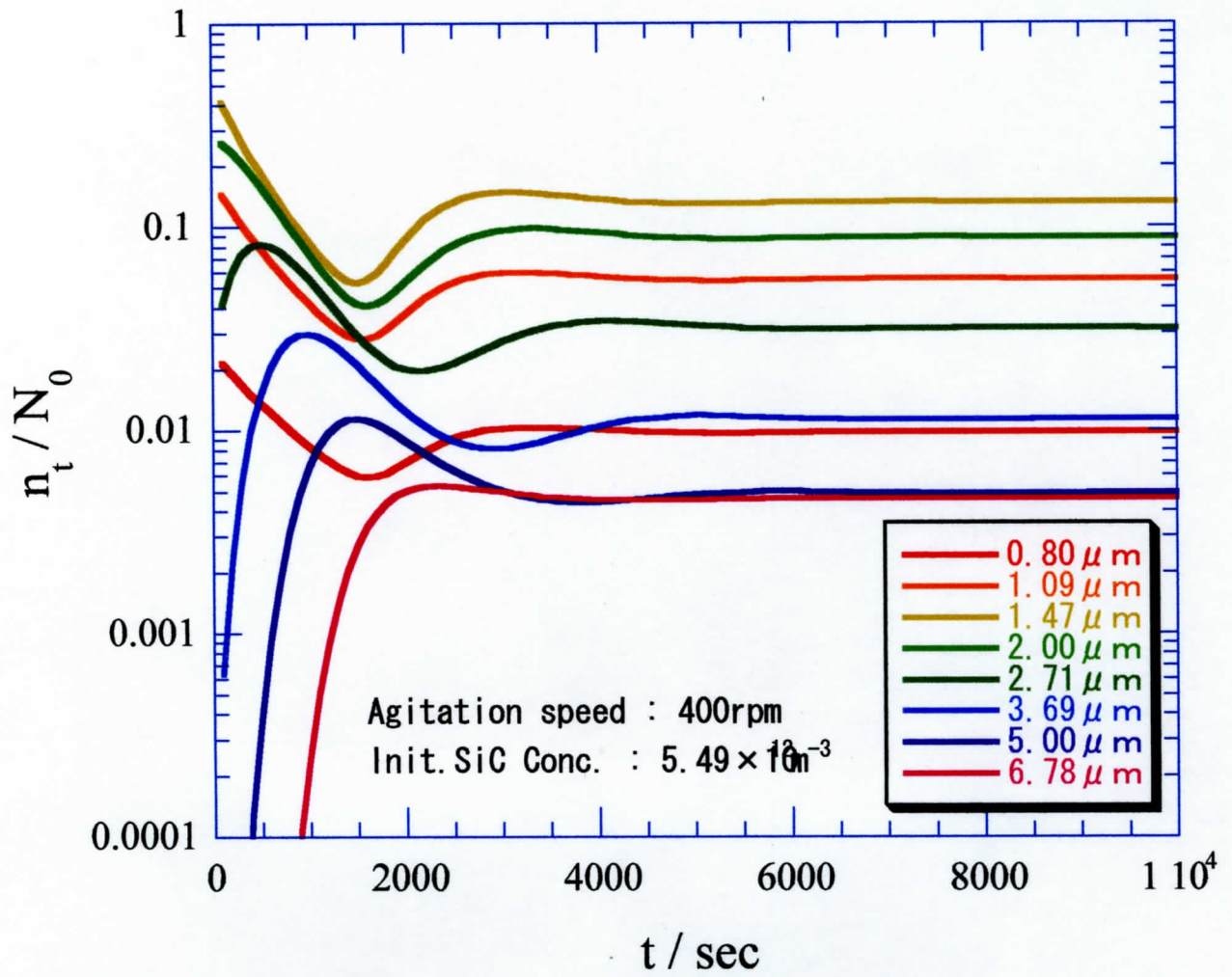


Fig.3.14 Calculated result of middle particle concentration with model[2].

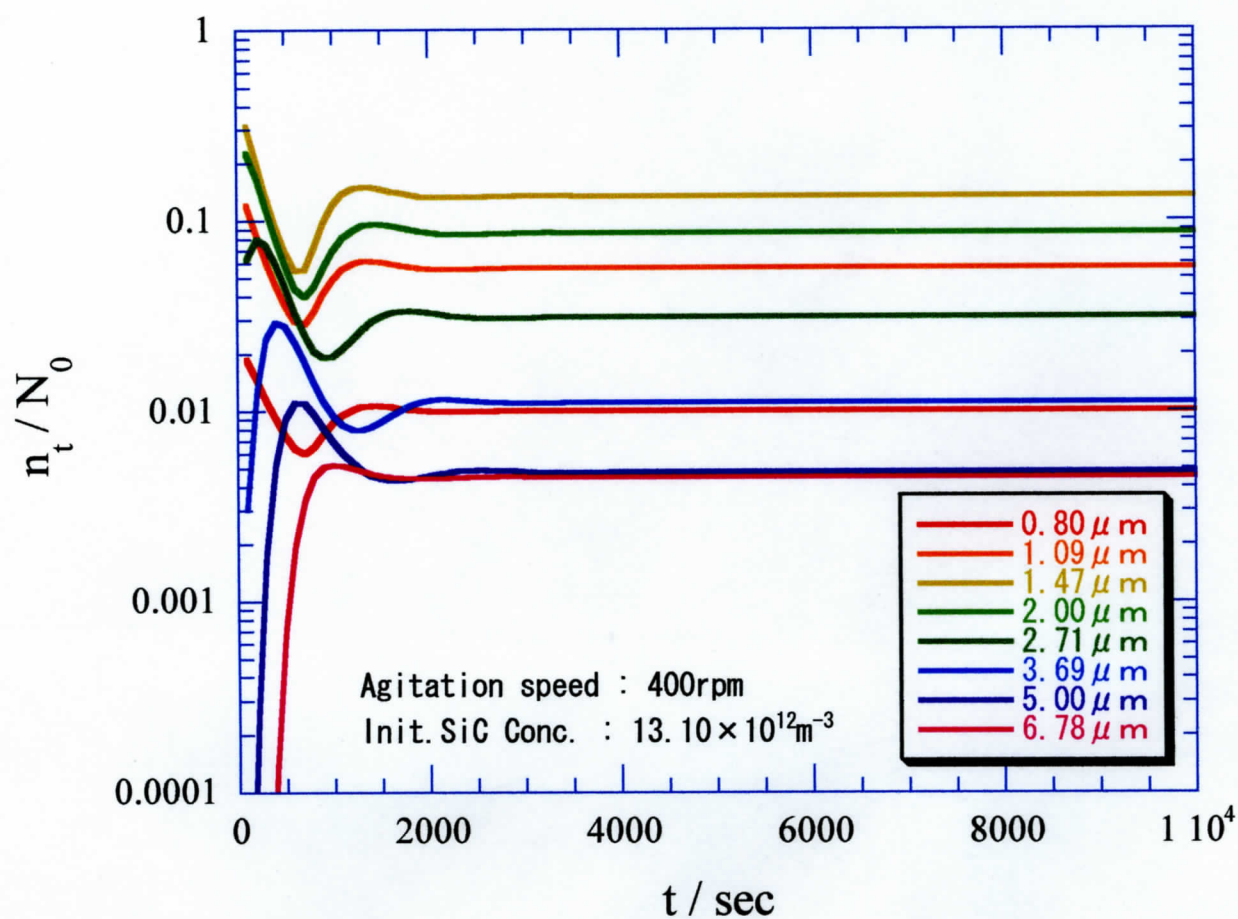


Fig.3.15 Calculated result of high particle concentration with model[2].



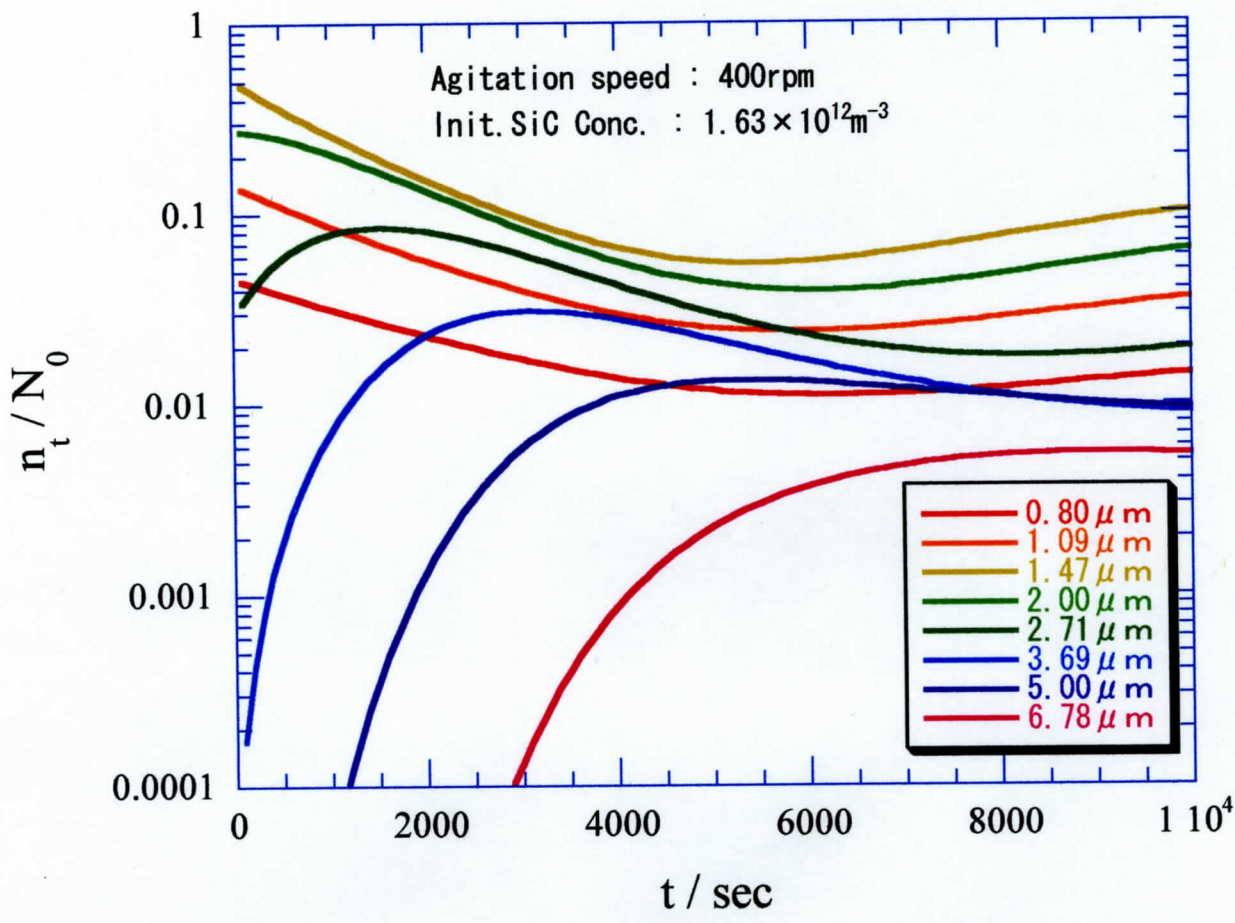


Fig.3.16 Calculated result of low particle concentration with model[3].

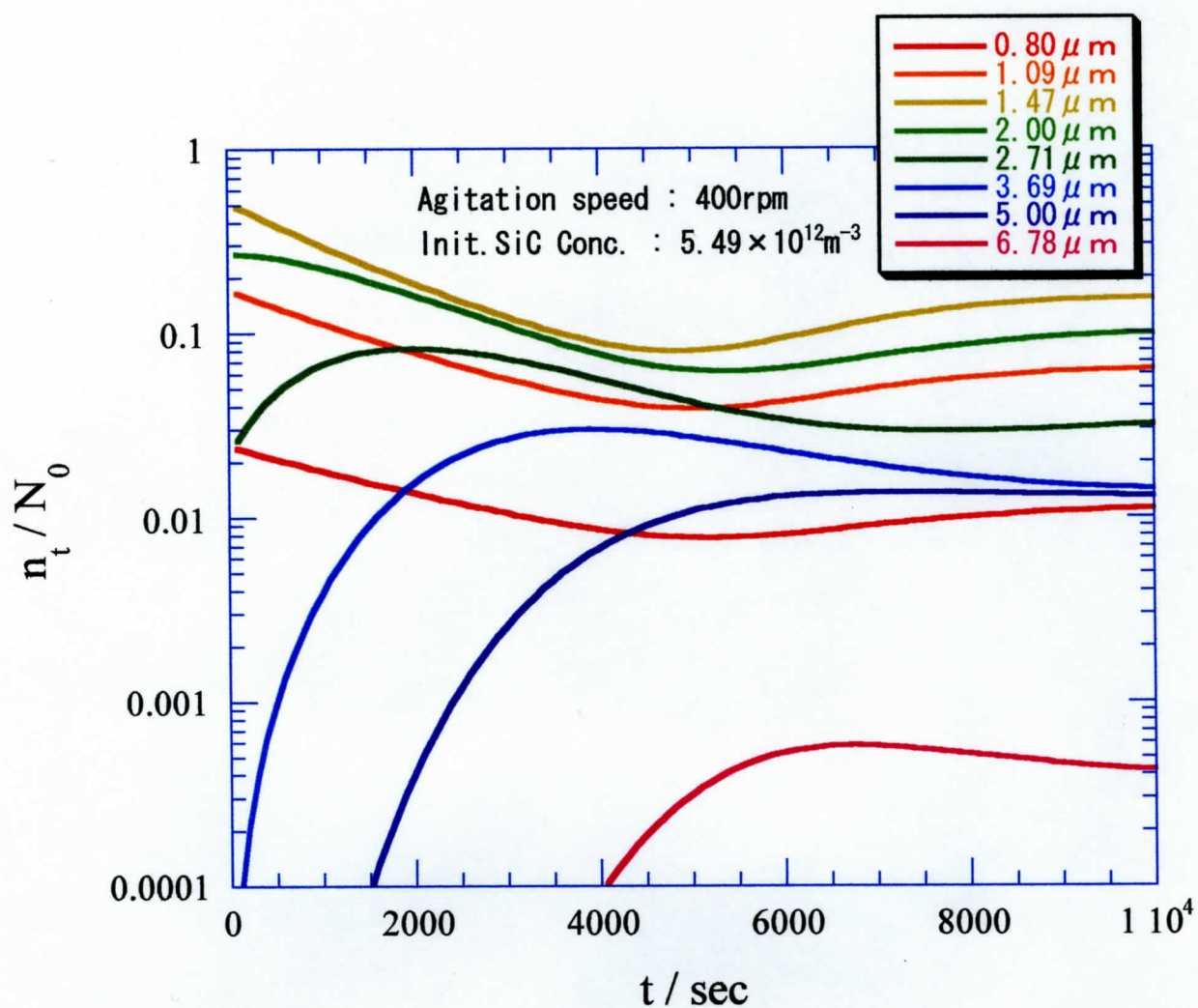


Fig.3.17 Calculated result of middle particle concentration with model[3].

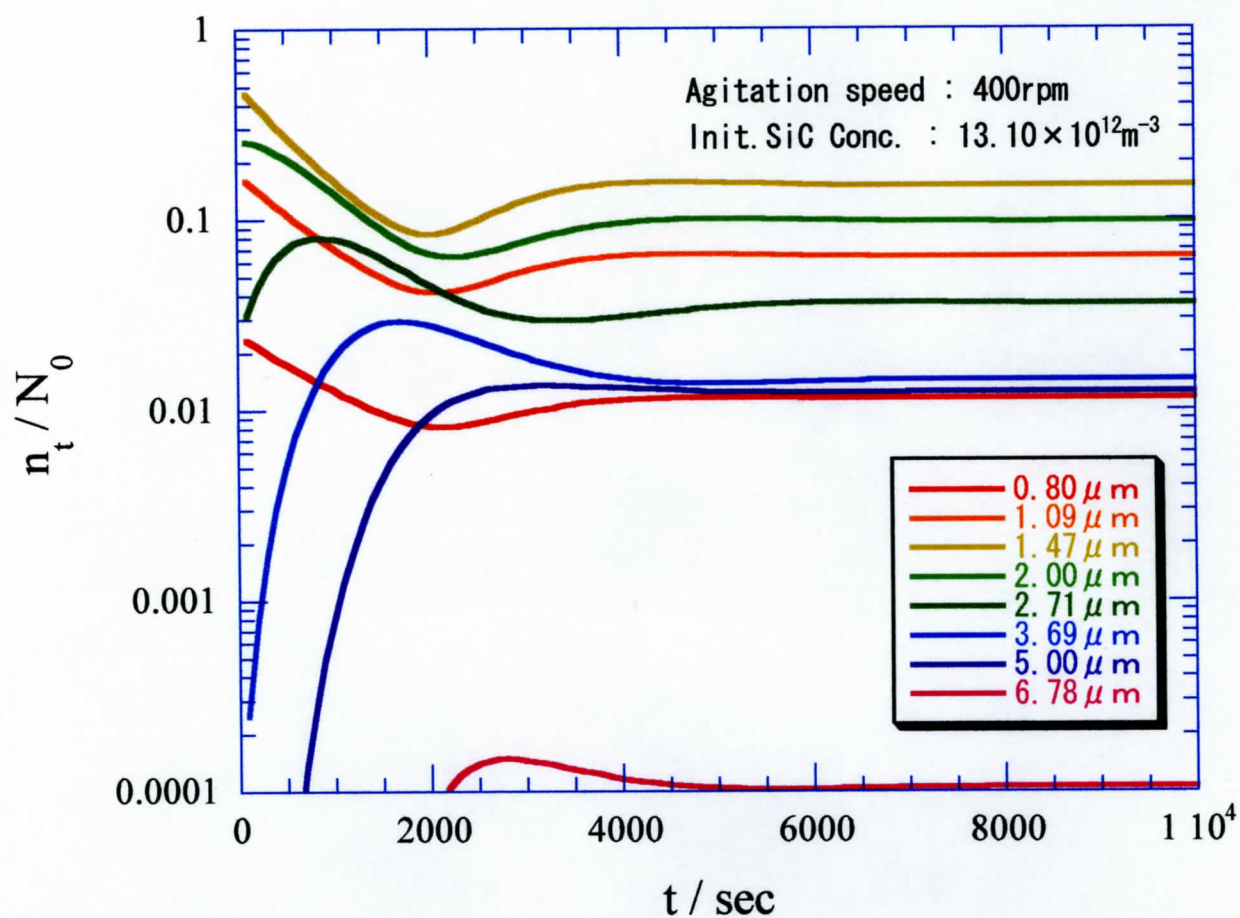


Fig.3.18 Calculated result of high particle concentration with model[3].

## 4 有機溶媒中の粒子凝集実験

水モデルによる凝集実験は、急凝集条件で行っているが、それでも極性の影響を受けて電気二重層が形成され、van der Waals 力の他に反発力が働いている可能性がある。また粒子の疎水性の影響も受けている可能性があることから、無極性の有機溶媒中における凝集実験を試みた。

### 4-1 実験方法

実験方法は水モデルの場合と同様であるので省略するが、溶媒を水の代わりにヘプタンおよびエタノールを使用し、実験を行った。

### 4-2 結果

まず、ヘプタンを用いて凝集実験を試みたが、粒子数の経時変化を測定することができなかった。その原因として、ヘプタンは無極性のため、電気抵抗変化から粒子を検出する粒子測定法を利用することが不可能だったためである。また、SiC はヘプタン中に馴染むことができず、液中に粒子を均一分散させることができなかった。

そこで、エタノールを溶媒に採用することにより、上記の問題点の克服を試みた。現在、問題点の克服には成功したが、凝集現象を確認する段階に至っていない。これには、使用したエタノールに問題があると考えられ、今後、エタノールの清浄化、有機溶媒の再検討などを考慮し、実験を行う予定である。

## 5 熔融金属中の凝集実験

実際の熔融金属中における凝集実験を行い、その凝集挙動について検討することを試みた。金属としては、比較的低融点である Al を使用した。分散させる粒子としては、SiC を用いた。

### 5-1 実験方法

実験装置の眼略図を Figure5-1 に示す。まず、市販の SiC 分散 Al 合金 (SiC20vol%) と純 Al を、全体で SiC 粒子の体積密度が約 4% になるように調整し、るつぽに投入後、加熱し溶解させた。また、実験は、Al の酸化を防ぐため、Ar ガスを系内に流しながら行った。

溶解が確認された時点で攪拌羽根および超音波ホーンを浸漬し SiC 粒子を均一分散させた。規定温度に達した時点で超音波の出力を停止し、攪拌羽根により攪拌しながら SiC 粒子の凝集を開始した。

一定の間隔で少量の Al 試料を内径 3.5mm の石英管で溶湯中央部から吸引採取し、水中急冷して分析試料とし、切断・研磨後に光学顕微鏡で表面の観察を行った。

また、超音波による SiC 粒子の分散していることを確認するため、実験終了後に再度超音波を一定時間出力し、その後の試料についても観察を行った。

実験条件は以下に示す通りである。

#### ・試料

Al-SiC20vol%-13 $\mu$ m	19.29g
pure-Al	378.58g
Total	397.87g

#### ・温度

ヒーター温度	840℃
試料温度	783℃

#### ・攪拌条件

攪拌羽根回転数	300rpm
トルク	2.7Kg-cm (実験初期)    0.3Kg-cm (実験終了し羽根停止後)

#### ・サンプリング

試料熔融後	超音波 on 時
超音波停止後	10, 30, 60, 120, 240 秒後
実験終了後	超音波を 300 秒印可し再サンプリング

## 5-2 実験結果

Figure 5.2 に光学顕微鏡観察結果を示す。

図より単独または数個が凝集した約  $15\mu\text{m}$  程度の大型の粒子が確認された。初期に含まれている SiC 粒子の平均径は  $13\mu\text{m}$  である。したがって大型の粒子は初期の粒子が凝集したものと考えることができる。

また、試料全領域にわたり均一分散した  $1\sim 3\mu\text{m}$  程度の小型の粒子が多数観察された。この粒子は以下の可能性がある。

- 1) 初期の SiC が超音波によって粉砕して生成した。
- 2) 最初に含まれていた小型の SiC 粒子のみが Al 中に均一分散した。
- 3) 溶解の過程でアルミナなどの酸化物粒子が生成し混入した。
- 4) 雰囲気調整用の Ar ガスが巻き込まれた。

そこで実験後の試料片を EPMa により分析した。

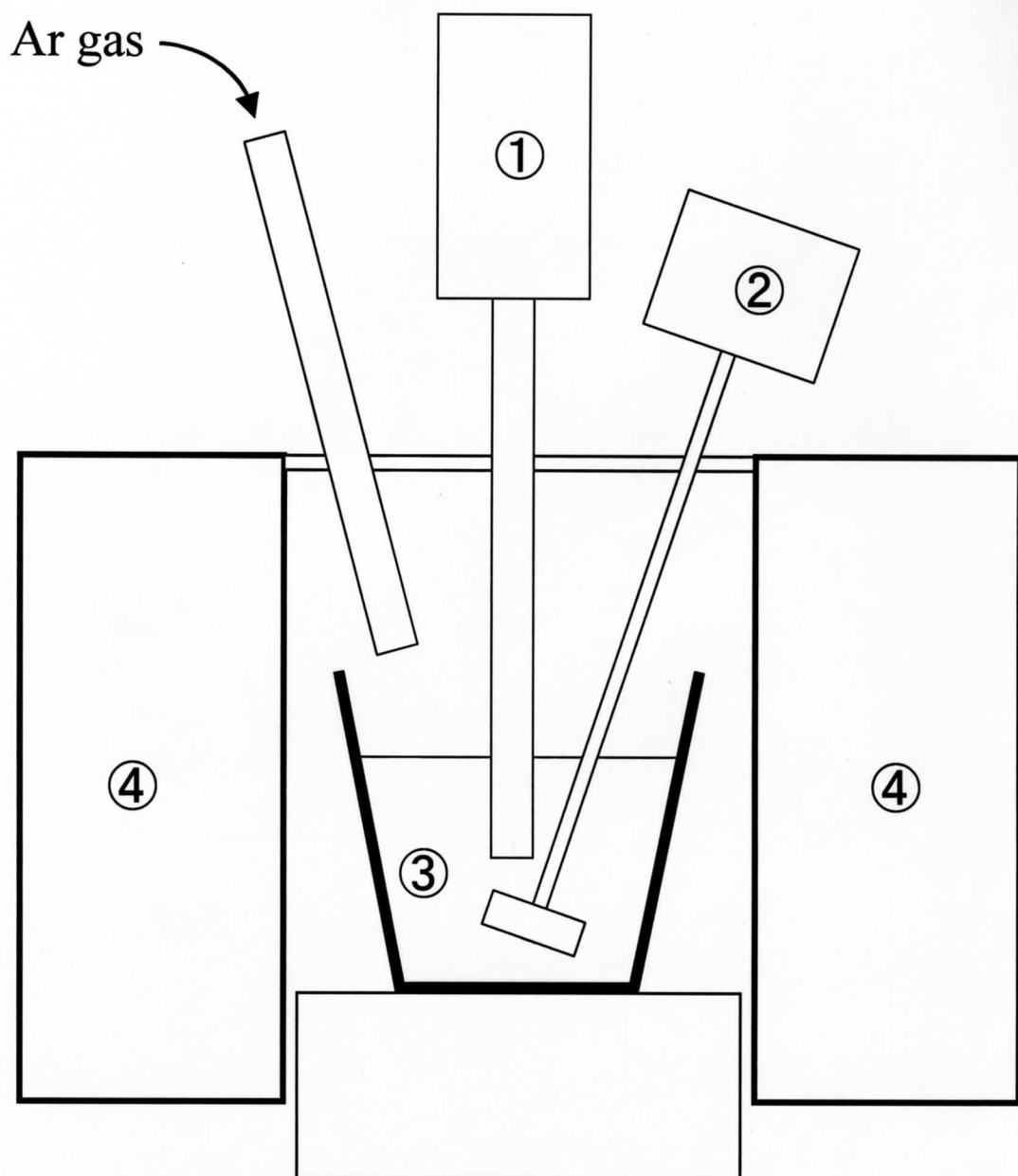
その結果、大型の粒子は Si と C の存在が確かめられた。また、大きさが初期投入された SiC 粒子とほぼ同じことから、初期投入された SiC 粒子であると考えられる。ただし SiC 粒子の外表面付近には O の存在の反応があり、粒子表面が酸化されて SiO<sub>2</sub> に変化している可能性がある。したがってこの系の凝集の考察を行う際、この影響を考慮する必要がある。

小型粒子は詳細な顕微鏡観察から研磨の過程で粒子本体は抜け落ちていることが確認され、その詳細については不明である。しかし O の存在が確認できないため、アルミナなどの酸化物は生成していないと考えられる。また若干の Si の反応があること、形状が尖っていることから、ガス系ではなく SiC の小型の粒子が存在していると考えられる。

試験片から観測される SiC 粒子の体積は、4vol% の投入量と比較すると、大型の粒子の個数は非常に少なく、小型の粒子が大型の粒子から粉砕したものであると考えてその体積を加算してもまだ小さい。よって今回の実験では SiC 粒子が均一に分散せず、沈降、もしくは壁周辺に集積していると考えられる。

今後この効果を除去できるよう工夫し、的確な考察を行う必要がある。





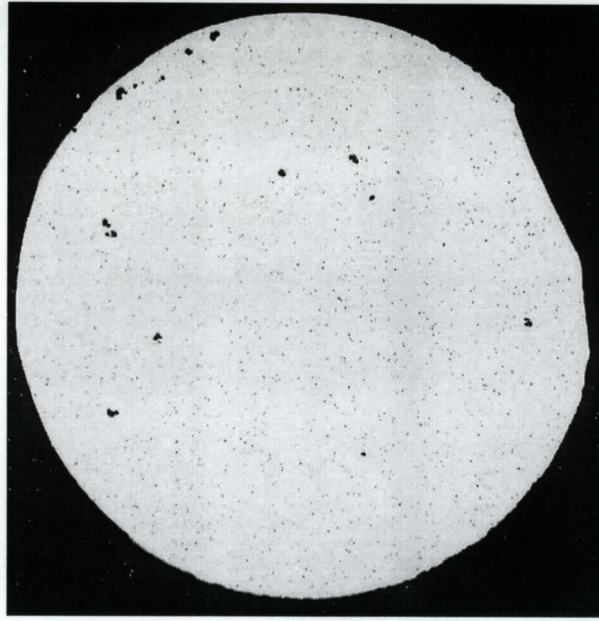
① ultrasonic wave horn

② stirrer

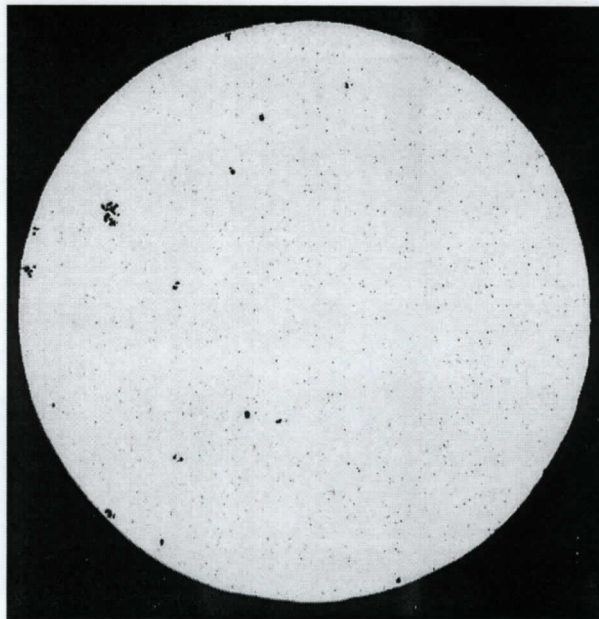
③ crucible

④ heater

Fig.5.1 Experimental apparatus.



a) 60sec



b) 240sec

Fig.5.2 Microphotographs of specimen.

[  $T=780^{\circ}\text{C}$ ,  $n=300\text{r.p.m.}$  ]

## 6 電磁力による熔融金属中粒子の分離実験

### 6-1 実験方法

パイレックス管の中に透明石英るつぼを置き、管内を Ar 雰囲気を保つ。液高さが約 70mm となるように所定量の純 Al をるつぼに入れ、高周波誘導溶解する。このとき、アルメル・クロメル熱電対によって溶湯の温度を測定し、約 800℃で一定となるように高周波誘導炉の出力を調節する。

温度が一定となったところで誘導炉の電源を一旦切り、電磁力の影響のないところで所定量の SiC 粒子分散 Al 合金をるつぼ中に投入する。また、SiC 粒子の均一分散のために攪拌棒で 30 秒間攪拌する。攪拌を止めると同時に、誘導炉の電源を入れて電磁力を印加し、出力を合金投入直前の値にまで戻し、熔融 Al を高周波磁場中に保持する。

その後、誘導炉の出力の再調節が完了した時点を 0 秒として、所定時間毎に少量の Al 試料を内径 3.5mm の石英管で溶湯中央部から吸引採取し、水中急冷して分析試料として用いた。

また、各条件下において、電磁力を 10 分間印加後の熔融 Al を空冷・凝固させて、試料を縦方向に切断・研磨し、光学顕微鏡により観察を行った。この実験では分析用の試料採取は行わず、熔融 Al 全量をるつぼ中で凝固させた。

実験では、サンプリング試料中の SiC 粒子の濃度測定と断面観察を行った。

Fig.6-1 に本実験に用いた装置の概略を示した。実験装置は、電磁攪拌のみによる影響を見るためのものを用いた。

本実験において使用した高周波誘導炉、加熱用高周波誘導コイル、試料は以下の通りである。

#### 【高周波誘導炉】

周波数：30,80,200kHz

出力：5kW

#### 【コイル】

巻数：15 ターン

コイル直径：0.097m 高さ：0.145m

#### 【試料】

Al：純度 99.9%

SiC 粒子分散 Al 合金：Si 9%、Mg 6%、SiC 17.95vol%

SiC 粒子：平均径 23  $\mu$ m および 13  $\mu$ m

また、実験における試料の組成および溶湯の外形は以下の通りである。

SiC 粒子の初期分散量：0.833vol% (1.14wt%)

溶湯の高さ：70.6mm

溶湯の直径：41.0mm

## 6-2 結果と考察

### <試料断面の観察>

誘導周波数 30kHz、80kHz、200kHz における凝固試料の断面観察写真を Fig.6-2 に示す。30kHz の場合 (Fig.6-2(a)) を見ると、SiC 粒子は強い電磁力が働くつば側面近傍に集積しており、電磁分離の効果が顕著に見られる。一方、200kHz の場合 (Fig.6-2(c)) には、SiC 粒子は側面への集積は少なく、底部により多く集まっている。これらの間の周波数である 80kHz の場合 (Fig.6-2(b)) は、30kHz により近い傾向を示している。

次に Fig.6-3 に凝固試料の断面の拡大写真を示す。これは Fig.6-2 のるつば側面近傍を高さ方向に 50 分割した場合の、中央付近と、底部付近を拡大したものである。これらの写真を比較すると、まず試料底部では明らかな違いが見られる。200kHz では底部に沈降している SiC 粒子が多く見られるが、30kHz、80kHz ではほとんど見られない。また、試料中央での SiC 粒子の集積具合を比較すると、周波数が高くなるほど、集積層の厚みが薄くなっていくのが分かる。これらは、表皮厚さの違いが影響していると思われる。

### <介在物粒子の粒径による影響>

粒径に関わらず、実験に使用する試料中 SiC 粒子の初期濃度は質量分率で合わせている。そのため、粒子の個数濃度として考えると、粒径が  $13\mu\text{m}$  の場合は  $23\mu\text{m}$  の場合に対して約 8 倍になっている。また、粒子に働く電磁アルキメデス力は粒径の 3 乗に比例するため、粒径が  $13\mu\text{m}$  の場合は  $23\mu\text{m}$  の場合に対して約  $1/8$  になる。したがって、個数濃度が高くても、一つ一つの粒子に働く電磁力が小さいため、平均粒径が  $13\mu\text{m}$  の SiC 粒子の電磁分離は  $23\mu\text{m}$  の場合よりも不利であると考えられる。しかし、以下のような実験結果が得られた。

①凝固試料における粒子集積層の厚みを Fig.6-4 に示す。図中、破線は出力から計算した表皮厚さで、実線およびプロットが粒子堆積層厚さの実測値である。平均粒径が  $23\mu\text{m}$  の SiC 粒子を用いた場合には、いずれの周波数においても粒子集積層の厚みが表皮の厚さを超えることはなかったが、 $13\mu\text{m}$  の粒子を用いた場合にはいずれの周波数においても最大厚みは表皮の厚さ以上になっている。

②誘導周波数 80kHz における溶融 Al 中 SiC 粒子濃度の経時変化を、平均粒径  $23\mu\text{m}$  の場合と  $13\mu\text{m}$  の場合について Fig.6-5 に示す。Figure6-5 からは、粒径の違いによる影響はほとんど見られない。

このような結果となった要因として、SiC 粒子の凝集が考えられる。実験の際、溶融 Al 中に SiC 粒子分散 Al 合金を投入後、SiC 粒子の均一分散のために攪拌棒で 30 秒間攪拌している。その後目的に応じて実験を進めていくが、この 30 秒間の攪拌中、粒子の凝集が起こっていると思われる。粒径が  $23\mu\text{m}$  程度の粒子ではほとんど凝集が起こらないといわれているが、粒径が  $13\mu\text{m}$  になると、凝集している可能性がある。

生成した凝集体は元の粒子よりも大きくなり、電磁力の作用を受けやすくなる。そのため  $13\mu\text{m}$  の粒子の電磁分離が  $23\mu\text{m}$  の粒子の場合と同じレベルで進むことになると考えることができる。また、凝集体の大きさが非常に大きなものになったと仮定すると、集積した凝集体が表皮の厚さからはみ出すことで、①のような結果が得られたのではないかと

思われる。また、凝集体内の粒子同士が非常に強い力で凝集し、疎な構造をとることで、流れからの妨害作用を無視して表皮の厚さを超えて集積できると考えられる。

以上の考えは一つの仮定であるが、Fig.6-3 に示すような凝固試料の断面の拡大写真からは、実際に凝集しているように見える。さらに、Fig.6-6 に示す急冷凝固試料の断面の拡大写真からも、実際に凝集していることが確認されている。この系における凝集については今後更に検証を行う必要があると思われる。

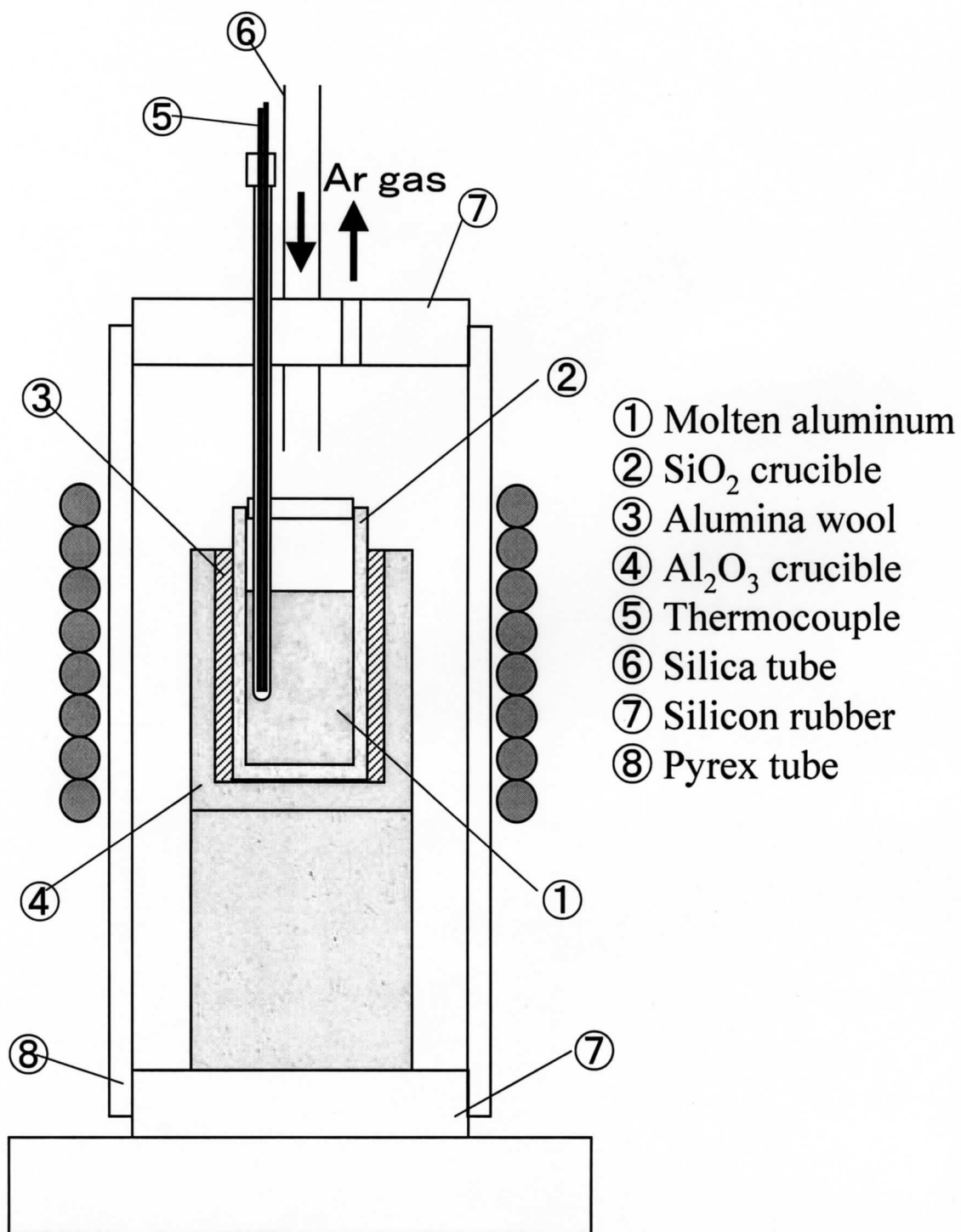


Fig.6.1 Experimental apparatus used for the separation of SiC particles from liquid Aluminum.





(a)30kHz



(b)80kHz



(c)200kHz

Fig.6.2 Photographs of cross section of aluminum after particle separation for various frequencies.

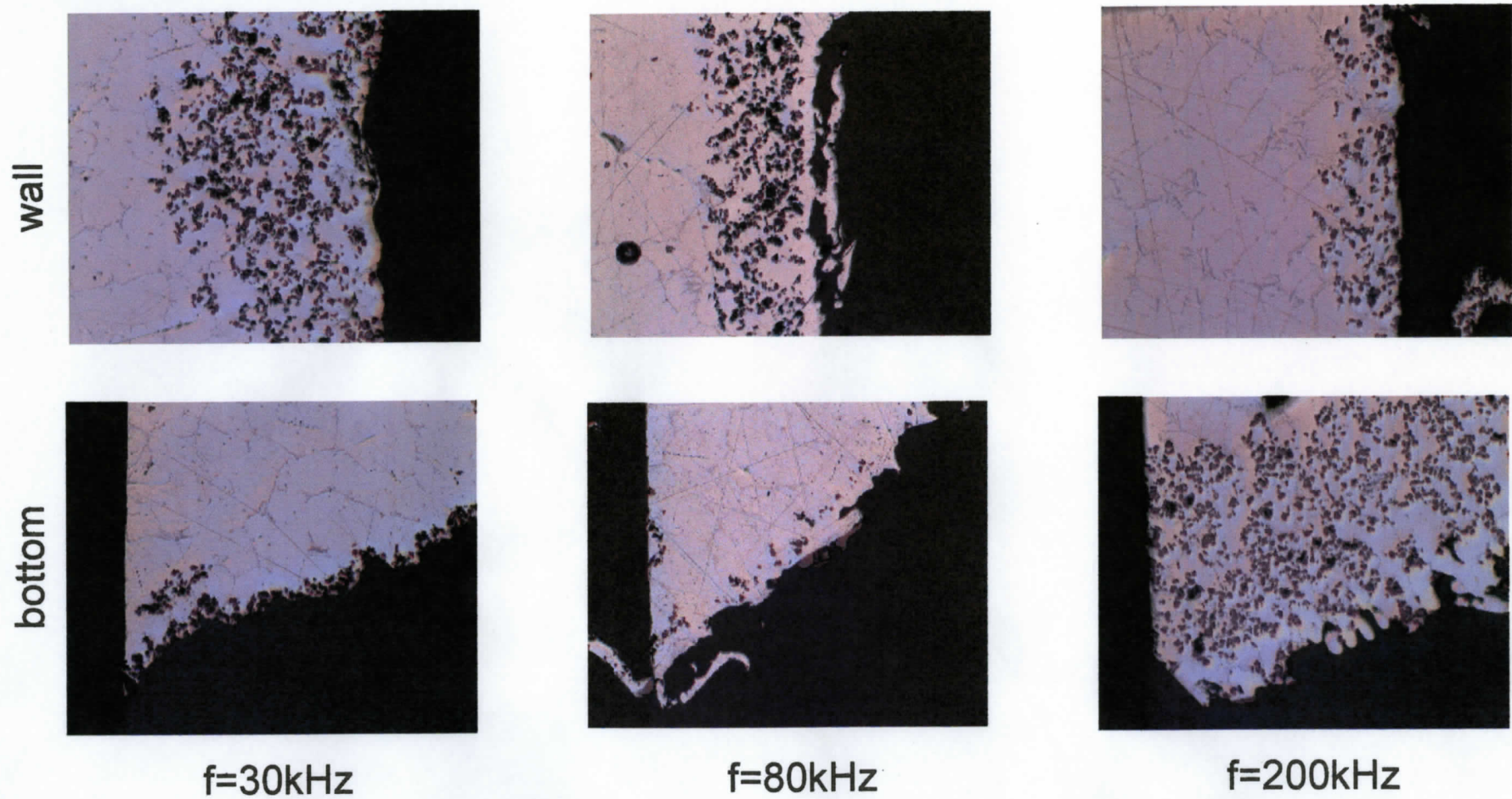


Fig.6-3. Magnification of aluminum after particle separation for various frequencies.

$100\ \mu\text{m}$

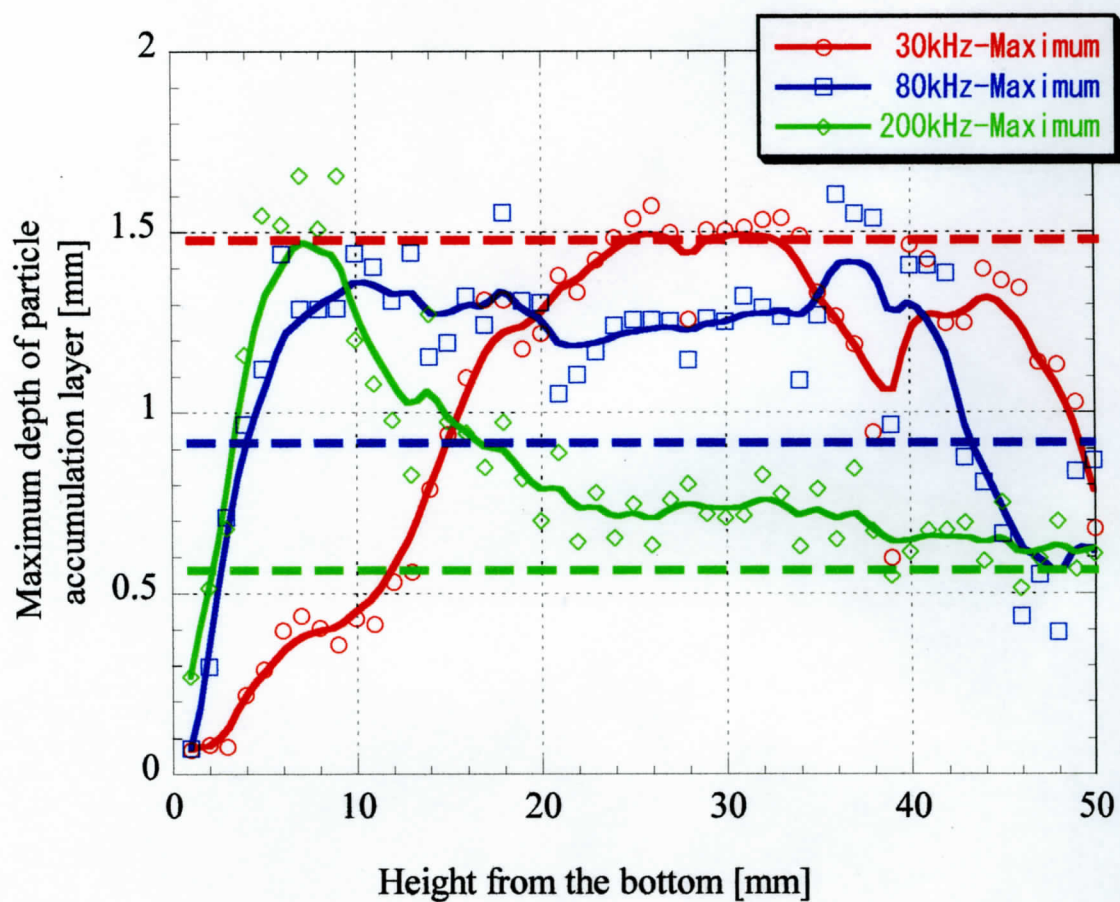


Fig.6.4 Depth of particle accumulation layer.

(  $d_p = 13 \mu m$  )

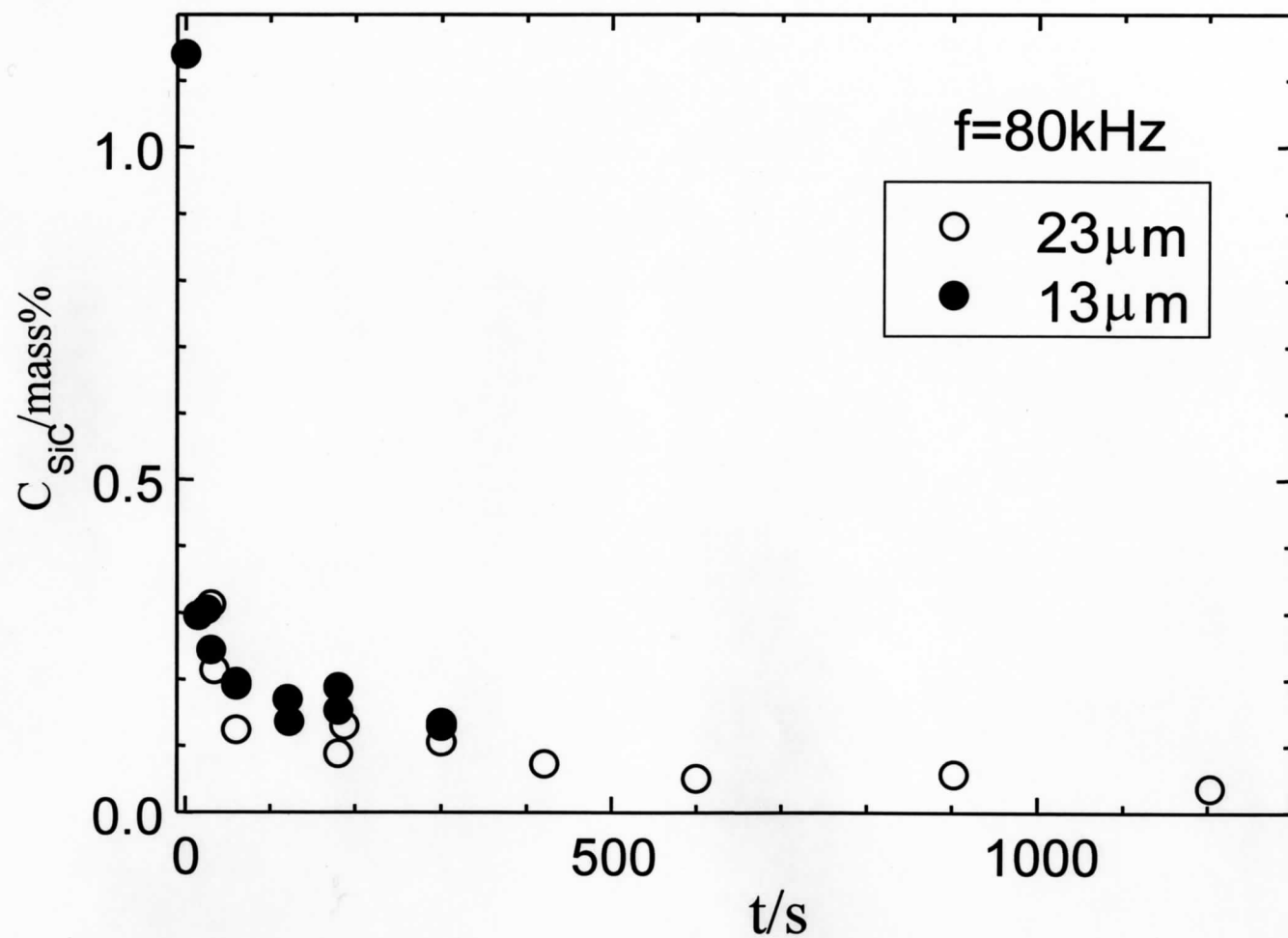
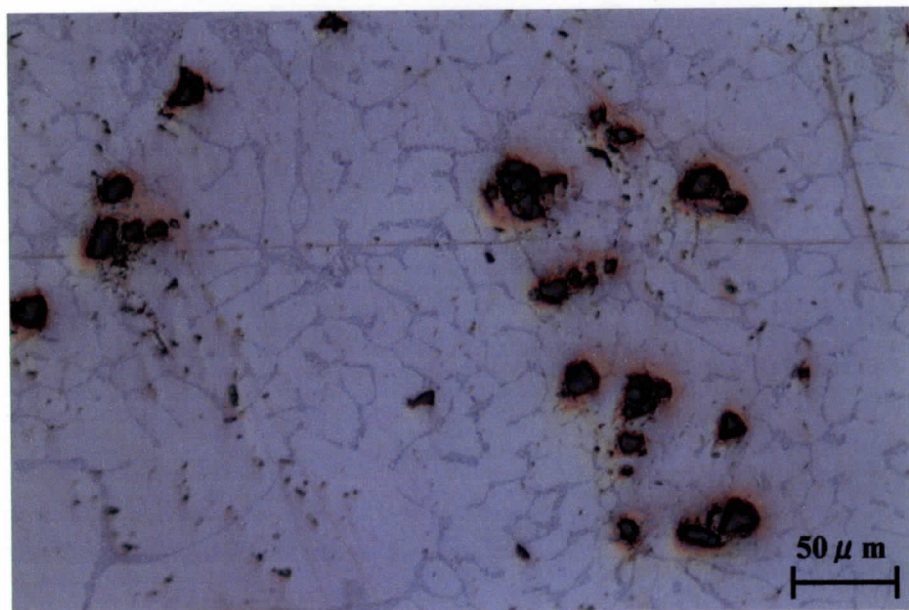
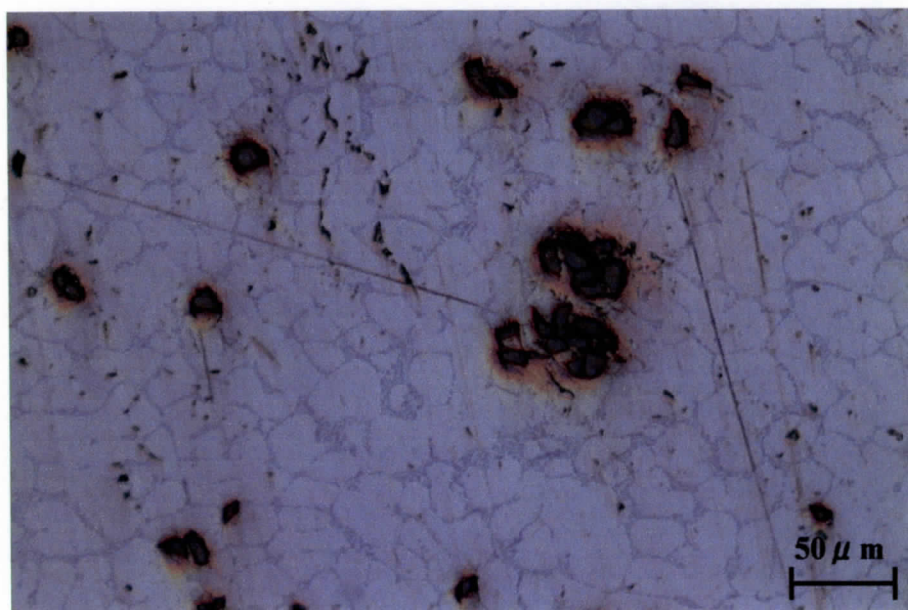


Fig.6.5 Concentration change with time for SiC particles with different diameters. ( $f=80\text{kHz}$ )





(a) 20s



(b) 60s

**Fig.6.6 Coagulation of SiC particles in molten Al.**

(Conditions : Frequency=30kHz, Induced Current<sub>max</sub>=170A,  
Dp=13 μ m, Initial SiC Concentration=1 vol%)

## 7 総括

本研究は液中懸濁粒子の乱流凝集現象に関する基礎研究とし、乱流状態中での微小粒子の凝集現象を実験的、理論的に考察した。

まず、攪拌羽根を用いた攪拌槽中における乱流凝集実験を行った。PSL 粒子では粒子の浮上が認められ、その結果として、Hamaker 定数が Lifshitz 理論からの Hamaker 定数よりも大きな値になると考察した。SiC 粒子では得られた Hamaker 定数は Lifshitz 理論からの Hamaker 定数と近い値を得た。

この現象に対し、計算時間の短縮の可能な grouping モデルを構築し、数値計算を行った。PSL 粒子での浮上除去は grouping モデルに終末浮上速度を考慮する事によりその現象を良く表す事ができた。SiC 粒子では、凝集のみで現象を表す事はできず、分裂現象を考慮したモデルを構築したところ、槽内の各粒径の粒子数経時変化をおおよそ表す事ができた。

次に、非極性の有機溶媒中での乱流凝集実験を試みた。

また、熔融 Al 中の SiC 粒子の凝集実験として、超音波分散装置を製作した。

最後に、電磁力による粒子の分離を目的とした実験を行った。その結果、熔融 Al 中の SiC 粒子は壁面付近に堆積し、凝集していることがわかった。



## 参考文献

- 1) L. Bergstrom, A. Meurk, H. Arwin and D. J. Rowcliffe :  
J. Am. Ceram. Soc., 79(1996), 339.
- 2) 外山茂樹, 飴野貴明, 十亀盛男 : 化学工学論文集第七卷第五号(1981), 524.
- 3) L. Bergstrom : Adv. Colloid Interface Sci., 70(1997), 125.